

# Laserspektroskopie an Nobelium ( $Z=102$ ) in einer Puffergaszelle

Laser spectroscopy of nobelium ( $Z=102$ ) in a buffergas cell

Zur Erlangung des Grades eines Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)  
genehmigte Dissertation von Dipl. Phys. Felix Lautenschläger aus 35410 Hungen

Oktober 2016 – Darmstadt – D 17



TECHNISCHE  
UNIVERSITÄT  
DARMSTADT

Fachbereich Physik  
Institut für Angewandte Physik  
Laser und Quantenoptik

Laserspektroskopie an Nobelium (Z=102) in einer Puffergaszelle  
Laser spectroscopy of nobelium (Z=102) in a buffergas cell

Genehmigte Dissertation von Dipl. Phys. Felix Lautenschläger aus 35410 Hungen

Referent: Prof. Dr. Thomas Walther  
Korreferent: Univ.-Prof. Dr. Michael Block

Tag der Einreichung: 04.05.2016  
Tag der Prüfung: 20.06.2016

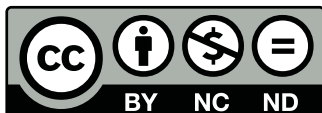
Darmstadt – D 17

Bitte zitieren Sie dieses Dokument als:

URN: [urn:nbn:de:tuda-tuprints-57095](https://nbn-resolving.org/urn:nbn:de:tuda-tuprints-57095)  
URL: [tuprints.ulb.tu-darmstadt.de/id/eprint/5709](https://tuprints.ulb.tu-darmstadt.de/id/eprint/5709)

Dieses Dokument wird bereitgestellt von tuprints,  
E-Publishing-Service der TU Darmstadt

[tuprints.ulb.tu-darmstadt.de](https://tuprints.ulb.tu-darmstadt.de)  
[tuprints@ulb.tu-darmstadt.de](mailto:tuprints@ulb.tu-darmstadt.de)



Die Veröffentlichung steht unter folgender Creative Commons Lizenz:  
Namensnennung – Keine kommerzielle Nutzung – Keine Bearbeitung 4.0 International

[creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/](https://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/)

Institut für Angewandte Physik  
Technische Universität Darmstadt



# **Laserspektroskopie an Nobelium ( $Z=102$ ) in einer Puffergaszelle**

Vom Fachbereich Physik  
der Technischen Universität Darmstadt

zur Erlangung des Grades  
eines Doktors der Naturwissenschaften  
(Dr. rer. nat.)

genehmigte  
Dissertation

von  
Dipl. Phys. Felix Lautenschläger  
aus 35410 Hungen

Darmstadt 2016  
D 17







# Zusammenfassung

Die mit der Ordnungszahl  $Z$  in etwa quadratisch skalierenden relativistischen Effekte auf die inneren Elektronen der schwersten Elemente führen zu einer stärkeren Abschirmung des Kernpotentials und beeinflussen die atomaren Zustände der Valenzelektronen. Damit Aussagen über den Einfluss dieser relativistischen Effekte gemacht werden können, werden hochsensitive experimentelle Techniken zur Extraktion spektroskopischer Daten von schwersten, bisher nicht untersuchten Elementen benötigt. Eine solche Technik ist die sogenannte **R**adiation detected **R**esonance Ionisation **S**pectroscopy (RADRIS) [1, 2].

Im Rahmen dieser Arbeit wurden erstmals laserspektroskopische Untersuchungen an dem Element Nobelium ( $Z=102$ ), für das bisher keinerlei atomare Spektren experimentell bekannt sind, durchgeführt. Zum Einsatz kam die RADRIS-Methode in einer gasgefüllten Puffergaszelle. Diese Methode wurde anhand systematischer Studien zur Verbesserung der Gesamteffizienz der Puffergaszelle weiterentwickelt.

Bei dem spektroskopisch untersuchten Isotop von Nobelium handelt es sich um  $^{254}\text{No}$ , welches sich wie alle anderen Nobeliumisotope nur mit Hilfe von Beschleunigeranlagen in Fusionsreaktionen herstellen lässt. Nach der Abtrennung der Fusionsprodukte vom Primärstrahl durch den Geschwindigkeitsfilter SHIP [3] (**S**eparator for **H**heavy **I**on reaction **P**roducts) wurden die  $^{254}\text{No}$ -Ionen innerhalb der Puffergaszelle in 95 mbar Argongas abgestoppt und im nächsten Schritt auf einem dünnen Tantaldraht aufgesammelt. Die spektroskopischen Untersuchungen sind in der Strahl-Aus-Phase durchgeführt worden, währenddessen der Tantaldraht kurz erhitzt wird, um die gesammelten  $^{254}\text{No}$ -Ionen als neutrale Atome oberhalb des Filaments zur Verfügung zu stellen. Im Falle einer resonanten optischen Anregung mit einer nachfolgenden, nichtresonanten Photoionisation, wobei das verwendete Laserlicht von einem Farbstofflaser und einem Excimerlaser verwendet wurde, wird das  $^{254}\text{No}$  ionisiert und die so erzeugten Ionen werden auf einem PIPS (**P**assivated **I**mplanted **P**lanar **S**ilicon)-Detektor aufgesammelt und durch ihren  $\alpha$ -Zerfall nachgewiesen.

Trotz der geringen für das Experiment verfügbaren Menge an  $^{254}\text{No}$ -Ionen, etwa vier pro Sekunde in der Fokalebene von SHIP, konnte ein atomarer Übergang in  $^{254}\text{No}$  identifiziert werden. Der gefundene atomare Übergang mit einer Zentralwellenzahl  $\bar{\nu}_1 = 29961,46 \text{ cm}^{-1}$  konnte durch Vergleich mit theoretischen Modellrechnungen [4–8] dem atomaren Übergang  $[\text{Rn}]5f^{14} 7s^2 \ ^1\text{S}_0 \rightarrow [\text{Rn}]5f^{14} 7s7p \ ^1\text{P}_1$  zugeordnet werden. In weiteren Messungen wurde das Sättigungsverhalten des ersten und des zweiten Anregungsschritts studiert. Mit der Datenanpassung zweier Sättigungsmodelle, die auf der Annahme eines Zwei-Niveau-Systems beruhen, konnte in dessen Gültigkeitsbereich eine untere Grenze des Einstein-

---

Koeffizienten für Modell 1 zu  $A_{ki} \geq 4,9 \cdot 10^7/\text{s}$  und für Modell 2 mit  $A_{ki} \geq 6,3 \cdot 10^7/\text{s}$  bestimmt werden.

Weiterhin konnte bei einer Anregungswellenzahl des zweiten Schritts von  $\bar{\nu}_2 = 23528,33 \text{ cm}^{-1}$  ein Rydberg-Zustand in  $^{254}\text{No}$  identifiziert werden. Durch die Anwendung eines zweistufigen resonanten Anregungsprozess konnte unter Berücksichtigung der in Stößen verfügbaren thermischen Energie eine Obergrenze für das erste Ionisationspotential in  $^{254}\text{No}$  angegeben werden. Diese liegt bei  $E_{ip} \leq 6,6835 \text{ eV}$ . Nobelium hat somit das höchste erste Ionisationspotential in der Reihe der bereits gemessenen Aktiniden.

Die mittlere experimentelle Gesamteffizienz der Messapparatur für Nobelium lag im Durchschnitt bei  $6,4 \pm 1,0 \%$ . Mit dieser hohen Effizienz ist es möglich gewesen, den atomaren Übergang mit einer Anzahl von nur 18000 am Target produzierten Nobeliumatomen aufzunehmen. Desweiteren konnte gezeigt werden, dass die Verunreinigung des Tantaldrahts im Laufe des Experiments eine negative Wirkung auf die Gesamteffizienz hat. Durch Aufheizen des Tantaldrahts auf  $1800^\circ\text{C}$  unter Vakuumkonditionen ( $p < 10^{-5} \text{ mbar}$ ) für 30 - 40 Minuten konnte die Gesamteffizienz für wenige Stunden auf einen Wert von  $12,2 \pm 1,3 \%$  gesteigert werden.

Desweiteren wurde Wolfram als zusätzliche Option als Filamentmaterial studiert. Jedoch konnte in diesen Messungen keine relevanten Resonanzionisation von Nobelium realisiert werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde gezeigt, dass laserspektroskopische Untersuchungen an den schwersten Elementen des Periodensystems mit der RADRIS-Methode in einer Puffergaszelle prinzipiell möglich sind und sich in Zukunft auf schwerere Elemente jenseits von Nobelium ( $Z=102$ ) ausweiten lassen.

## Summary

Relativistic effects scaling with  $Z^2$  are responsible for changes in the atomic structure of the heaviest elements due to their growing influence on the inner electrons. Thus for studying relativistic effects, high-sensitive experimental techniques to extract atomic properties are needed. A recommended technique for this purpose is the so called **R**Adiation **d**etected **R**esonance **I**onisation **S**pectroscopy (RADRIS) [1, 2].

During this work, laser spectroscopic studies on the element nobelium ( $Z=102$ ) have been performed for the first time.

The RADRIS technique was exploited using a buffergas filled stopping cell with the goal to increase the overall efficiency of this method.

The investigated isotope of nobelium is  $^{254}\text{No}$ , which can only be produced in fusion-reaction at online accelerator facilities. After the separation from the primary beam by the velocity filter SHIP [3] (**S**eparator for **H**heavy **I**on reaction **P**roducts), the  $^{254}\text{No}$  ions are thermalized in 95 mbar argon gas and subsequently collected onto a thin tantalum catcher wire. The spectroscopic studies are performed during the beam-off period, while the accumulated  $^{254}\text{No}$  ions are re-evaporated as neutral atoms. In case of a successful resonant excitation and subsequent ionisation by laser radiation, the created photoions are transported to a PIPS (**P**assivated **I**mplanted **P**lanar **S**ilicon) -detector, where they are detected by their characteristic  $\alpha$ -decay.

Even with a low available rate of around 4  $^{254}\text{No}$  ions per second in the focal plane of SHIP, an atomic transition in  $^{254}\text{No}$  at an excitation wavenumber of  $\bar{\nu}_1 = 29961.46 \text{ cm}^{-1}$  was identified.

The observed excitation wavenumber matches with theoretical predictions [4–8] for the atomic  $[\text{Rn}]5f^{14} 7s^2 \ ^1\text{S}_0 \rightarrow [\text{Rn}]5f^{14} 7s7p \ ^1\text{P}_1$  transition. Furthermore, the saturation characteristics of the first and the second excitation step was studied. By assuming a two-level scheme, a lower limit of the Einstein coefficient of  $A_{ki} \geq 4.9 \cdot 10^7 / \text{s}$  was determined.

In addition, a high-lying rydberg state in  $^{254}\text{No}$  at a second excitation wavenumber of  $\bar{\nu}_2 = 23528.33 \text{ cm}^{-1}$  was identified. By applying a two-step resonant excitation scheme and taking into consideration the gas collisions, an upper limit of the first ionisation potential of  $^{254}\text{No}$  was calculated to be  $E_{\text{IP}} \leq 6.6835 \text{ eV}$ . Thus, nobelium has the highest ionisation potential of the investigated actinides so far.

A mean overall efficiency of the buffergas-filled stopping cell of about  $6.4 \pm 1.0 \%$  was

---

extracted. Less than 18000  $^{254}\text{No}$  atoms were delivered to the buffergas-filled stopping cell to record the atomic transition. Furthermore, impurities which stick on the tantalum wire are responsible for efficiency losses. The overall efficiency can be boosted up to  $12.2 \pm 1.3$  % when the tantalum wire was previously heated up to 1800 °C under vacuum conditions ( $p < 10^{-5}$  mbar) for around 30-40 minutes.

In addition, tungsten instead of tantalum was used as filament material, but no significant resonance ionisation of  $^{254}\text{No}$  was registered.

Within this work, it was showed that experiments exploiting the RADRIS method in a buffergas-filled stopping cell on the heaviest elements of the periodic table are possible and can be extended to even heavier elements beyond nobelium ( $Z=102$ ) in the future.



# Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	4
2	Grundlegendes	8
2.1	Produktion der schwersten Elemente	8
2.1.1	Herstellung des Elements Nobelium	10
2.1.2	Herstellung des Elements Ytterbium	11
2.2	Atomare Spektren der Elemente	12
2.2.1	Elektronen-Schalenstruktur der Elemente	12
2.2.2	Hartree-Fock-Methode	14
2.2.3	Relativistische Erweiterung auf die schwersten Elemente	15
2.2.4	Rydbergzustände und Ionisationspotential	19
2.3	Resonanzionisationsspektroskopie (RIS)	23
2.3.1	Einführung in die Resonanzionisationsspektroskopie	23
2.3.2	Niveau-Anregungen mit Laserlicht	26
2.4	Theoretische Vorhersagen des atomaren Übergangs für das Element Nobelium	31
2.4.1	Atomarer Übergang	32
2.4.2	Ionisationspotential	33
2.5	Vorüberlegungen zur Liniensuche in Nobelium	34
2.5.1	Anforderungen an die experimentelle Methode	34
2.5.2	Anforderungen an die Lasersysteme	35
2.5.3	Anforderungen an die Puffergaszelle	37
2.5.4	Experimentprinzip	37
3	Experimenteller Aufbau	40
3.1	Der Geschwindigkeitsfilter SHIP	41
3.2	Die Puffergaszelle	42
3.2.1	Vakuumerzeugung und Gasversorgung der Puffergaszelle	45
3.2.2	Gasversorgung der Messapparatur	46
3.2.3	Elektrodenpotentiale und Filamentheizung	48
3.2.4	Datenaufnahme (DAQ)	48
3.3	Lasersysteme	51
3.3.1	Strahltransport und Einkopplung in die Messapparatur	54
3.3.2	Zeitliche Synchronisation der Laserpulse	56
3.4	Experimentsteuerung	58

---

<b>4</b>	<b>Optimierungen der experimentellen Parameter der RADRIS Methode</b>	<b>62</b>
4.1	Simulationen . . . . .	62
4.1.1	Abschätzung der Stoppverteilung der Fusionsprodukte innerhalb der Puffergaszelle . . . . .	62
4.1.2	SimION Simulationen mit der RADRIS Puffergaszelle . . . . .	65
4.2	Messzyklus fuer Ytterbium und Nobelium . . . . .	68
4.3	On-line Messungen mit radioaktivem Ytterbium . . . . .	69
4.3.1	Identifikation der gesammelten Fusionsprodukte auf dem PIPS-Detektor	69
4.3.2	Optimierung der Stoppverteilung in Abhängigkeit der Abbremsfolien- dicke und des Puffergasdrucks . . . . .	71
4.3.3	Einfluss der Filamentposition auf die Messmethode . . . . .	73
4.3.4	Einfluss der Filamenttemperatur auf die Messmethode . . . . .	75
4.3.5	Sättigungscharakteristik und Lebensdauer des Singulett-P-Zustands in Ytterbium . . . . .	77
4.3.6	Sättigungsverhalten des zweiten Anregungsschritts . . . . .	82
4.3.7	Gesamteffizienz der Puffergaszelle und Effizienzabschätzung für $^{254}\text{No}$	84
<b>5</b>	<b>Experimente an Nobelium</b>	<b>86</b>
5.1	Stand der Laserspektroskopie an Nobelium . . . . .	86
5.1.1	Desorptionsenthalpie von Nobelium von Tantal . . . . .	86
5.1.2	Suche nach atomaren Linien in $^{254}\text{No}$ in 2007 . . . . .	87
5.2	Experimente an Nobelium 2014 und 2015 . . . . .	87
5.2.1	Vorbereitende Messungen . . . . .	88
5.2.2	Suche nach atomaren Zuständen in $^{254}\text{No}$ . . . . .	92
5.2.3	Charakterisierung des atomaren Übergangs . . . . .	94
5.2.4	Sättigungscharakteristik und Lebensdauer des Singulett-P Zustands .	100
5.2.5	Das Sättigungsverhalten des zweiten Anregungsschrittes . . . . .	108
5.2.6	Suche nach Rydberg-Zuständen in der Nähe des Ionisationspotentials	108
5.2.7	Abschätzung des ersten Ionisationspotentials . . . . .	110
5.2.8	Experimentelle Gesamteffizienz der Puffergaszelle . . . . .	112
<b>6</b>	<b>Ausblick</b>	<b>116</b>
6.1	Weitere Spektroskopie an Nobelium . . . . .	116
6.1.1	Suche nach weiteren atomaren Linien in Nobelium mit der RADRIS Methode . . . . .	116
6.1.2	Bestimmung des Ionisationspotentials in Nobelium mit der RADRIS Methode . . . . .	118
6.1.3	Suche nach atomaren Übergängen in Lawrencium und Rutherfordium	119
	<b>Appendices</b>	<b>120</b>
<b>A</b>	<b>Bestimmung der Fasertransmission des ersten Anregungsschritts</b>	<b>121</b>
<b>B</b>	<b>Bestimmung der Photonenflussdichte</b>	<b>123</b>



---

C	Rate in Fokalebene von SHIP	125
D	Die Off-line Puffergaszelle	127
E	Off-line Messungen mit nat. Ytterbium (Yb)	129
F	Rydbergserien des Singlett-P Zustands bei verschiedenem Puffergasdruck	132
	Literaturverzeichnis	138
	Publikationen	149
	Lebenslauf	150
	Danksagung	151



# Abbildungsverzeichnis

1.1	Ausschnitt Periodensystem . . . . .	5
2.1	Produktionsquerschnitt Nobelium HIVAP . . . . .	11
2.2	Prduktionsquerschnitt HIVAP Ytterbium . . . . .	12
2.3	Quantendefekt Cäsium . . . . .	21
2.4	Quantendefekt Schema LuFano . . . . .	22
2.5	Schematische Zusammenfassung RIS . . . . .	23
2.6	Anregungsschema Laserspektroskopie . . . . .	24
2.7	Schema für 2-Niveau-System . . . . .	27
2.8	Theoretische Vorhersagen Nobelium . . . . .	32
2.9	Schematisches Prinzip der RADRIS Methode . . . . .	38
2.10	Zyklusdefinition der RADRIS Methode . . . . .	39
3.1	Geschwindigkeitsfilter SHIP . . . . .	41
3.2	3D Zeichnung der RADRIS-Puffergaszelle . . . . .	43
3.3	Innenleben der RADRIS-Messapparatur . . . . .	47
3.4	Schematischer Arbeitsplan der Datenaufnahme . . . . .	50
3.5	Schematischer Plan des Laserlabors . . . . .	52
3.6	Einkopplung der Laser in die Messapparatur . . . . .	55
3.7	Zeitliche Steuerung der Pumplaser . . . . .	57
3.8	Experimentsteuerung . . . . .	61
4.1	Nobelium Eindringtiefe in 95 mbar Argon . . . . .	64
4.2	Vertikalschnitt Nobelium in 95 mbar Argon . . . . .	65
4.3	SIMION-Simulation zum Aufsammeln der Fusionsprodukte . . . . .	66
4.4	SimION Simulation direkter Transports für Ytterbium . . . . .	67
4.5	Anregungsschema Ytterbium . . . . .	70
4.6	Alphaspektrum Yb 2015 . . . . .	71
4.7	On-line Optimierung Puffergasdruck und Abbremsfolien für $^{155}\text{Yb}$ . . . . .	73
4.8	Definition des Filamentabstands zum Mittelpunkt der Puffergaszelle . . . . .	74
4.9	Abhängigkeit Signalamplitude $^{155}\text{Yb}$ von Position des Tantaldrahts. . . . .	75
4.10	$^{155}\text{Yb}$ $\alpha$ -Aktivität gegenüber Filamenttemperatur . . . . .	76
4.11	Sättigungsverhalten des ersten Anregungsschritts in $^{155}\text{Yb}$ . . . . .	78
4.12	Lebensdauerermessung des Singulett-P Zustands in $^{155}\text{Yb}$ . . . . .	80
4.13	5-Niveau Schema Ytterbium . . . . .	81
4.14	Sättigungsverhalten des zweiten Anregungsschritts in $^{155}\text{Yb}$ . . . . .	83

---

5.1	Alphaspektrum Nobelium 2015 . . . . .	89
5.2	Nobelium Degradier und Druckmessung 2015 . . . . .	90
5.3	Anregungsschema Liniensuche in Nobelium 2015 . . . . .	93
5.4	Feinscan Nobelium - Resonanz . . . . .	95
5.5	Gasdruck und Filamenttemperatur RIS - Nobelium . . . . .	97
5.6	Auswirkungen Reinigungsprozess der Messapparatur und Fängerdraht . . . . .	98
5.7	Sättigungsverhalten des ersten Anregungsschrittes in Nobelium . . . . .	102
5.8	Lebensdauer messung des atomaren Übergangs in Nobelium . . . . .	104
5.9	Schema für Multiples Niveau-System . . . . .	107
5.10	Sättigungsmessung zweiter Schritt in Nobelium . . . . .	109
5.11	Schema für Suche nach Rydbergzuständen in Nobelium . . . . .	110
6.1	Anregungsschema für die Suche nach weiteren atomaren Zuständen in Nobelium. . . . .	117
A.1	Fasertransmission . . . . .	121
D.1	2D und 3D- Darstellung der off-Line Puffergaszelle . . . . .	127
E.1	Messprinzip zum Studium der räumlichen Verteilung . . . . .	130
E.2	Signalamplitude Ytterbium vs. Puffergasdruck . . . . .	131
E.3	Signalamplitude Ytterbium vs Filamenttemperatur . . . . .	131
F.1	Rydbergserie in Ytterbium bei 60 mbar . . . . .	134
F.2	Einzelner Rydbergzustand bei 60 mbar . . . . .	135
F.3	Rydberg-Ritz Datenanpassung für Ytterbium . . . . .	136

# Tabellenverzeichnis

2.1	Eigenschaften Rydberg-Atome . . . . .	20
3.1	Spannungswerte für RADRIS-Experiment . . . . .	49
3.2	Eckdaten Excimer & Farbstofflaser . . . . .	53
3.3	Betriebsmodi OPO-System . . . . .	53
4.1	Zyklusdefinition für Ytterbium und Nobelium . . . . .	68
4.2	Messzykluszeiten für Ytterbium und Nobelium . . . . .	69
4.3	Zerfallseigenschaften Ytterbium online . . . . .	72
4.4	Auflistung Effizienzen der Puffergaszelle . . . . .	85
5.1	Zerfallseigenschaften Nobelium online . . . . .	88
5.2	Auflistung theoretischer Vorhersagen zu Zuständen in Nobelium. . . . .	96
5.3	Ergebnisse Sättigungsmessung in Nobelium . . . . .	101
5.4	Ergebnisse Verzögerungsmessungen in Nobelium . . . . .	103
5.5	Theoretische Vorhersagen Triplet-D in Nobelium . . . . .	105
5.6	Theoretische und experimentelle Werte des Ionisationspotentials in Nobelium	112
5.7	Gesamteffizienz Messapparatur . . . . .	113
6.1	Theoretische Vorhersagen des Triplet-P Zustands in Nobelium . . . . .	116
6.2	Triplet-D Niveau für 3 Schritt-Photoionisationsprozess. . . . .	118
B.1	Photonenenergie vs. Wellenlänge . . . . .	124
D.1	Spannungskonfiguration der off-line Messapparatur . . . . .	128
F.1	Abhängigkeit eines hochliegenden Rydbergzustands vom Puffergasdruck . . .	133
F.2	Ergebnisse Rydberg-Ritz-Datenanpassung vs. Puffergasdruck . . . . .	135

# Kapitel 1

## Einleitung

Die Bestimmung der physikalischen und chemischen Eigenschaften der Elemente mit der Ordnungszahl  $Z > 100$  ist eine der schwierigsten Unterfangen der modernen Physik. Dabei trägt die Untersuchung der schwersten und superschweren Elemente, kurz SHE (von **Super Heavy Elements**), einen bedeutenden Teil dazu bei, wenn es um das Verständnis der Dynamik und Aufbaustruktur dieser exotischen Atome geht [9–12]. Ein Modell, dass den Atomkern als einen Flüssigkeitstropfen aus Neutronen und Protonen beschreibt, sagte für die schwersten Elemente mit Ordnungszahlen  $Z > 103$  sofortige Spontanspaltung voraus. Jedoch sind ein Teil dieser schwersten wesentlich stabiler als angenommen. Der Grund dafür ist, dass sich, analog wie im Falle der Elektronen in der Atomhülle, die Protonen und Neutronen auf sogenannten Kernschalen sammeln. Diese quantenmechanischer Schalenbildung wirkt der Coulombkraft auf die Protonen im Kern entgegen und verhindert somit ein sofortiges Aufplatzen des Kerns [13–16]. Ebenfalls wie bei den Elektronen kommt es bei den Kernschalen zu Schalenabschlüssen, sowohl bei den Protonen als auch bei den Neutronen. Kerne mit abgeschlossenen äusseren Protonen- oder Neutronenschalen gelten dabei als besonders stabil. Bisher gefundene Schalenabschlüsse sind bei den Protonenanzahlen  $Z = 8, 20, 28, 50$  und  $82$ , bei den Neutronen  $N = 8, 20, 28, 50, 82$  und  $126$ .

Neben den Kerneigenschaften ist auch die elektronische Struktur der schwersten Elemente von besonderem Interesse. Die Beschreibung der Elektronenschalen bei den schwersten Elementen gestaltet sich sehr schwierig, da hier relativistische Effekte, die ungefähr quadratisch mit  $Z$  anwachsen, einen nicht mehr vernachlässigbar kleinen Einfluss auf die inneren Elektronen des Atoms haben und durch den relativistisch bedingten Anstieg der Elektronenmasse eine Kontraktion der Wellenfunktionen der innersten Elektronen verursachen. Dies führt zu einer stärkeren Abschirmung des Kernpotentials zu den Valenzelektronen und beeinflusst somit ihre Bindungsenergie und letztlich damit auch das chemische Verhalten des Elements.

Zum Studium der physikalischen und chemischen Eigenschaften der schwersten Elemente gibt es eine Reihe von Techniken. Mit Hilfe von chemischen Experimenten an einzelnen Atomen, sowohl in flüssiger Phase als auch in der Gasphase [17] konnte auf die Valenzelektronenstruktur bis zum superschweren Element Hassium ( $Z=108$ ) [18] geschlossen werden. Eine andere Methode in der Chemie beschäftigt sich mit Hilfe des Separators TASCA (TransActinide Separator and Chemistry Apparatus) [19] mit der Fragestellung nach dem Adsorptionsverhalten des Elements Flerovium ( $Z=114$ ) [20]. Diese beschriebenen Methoden zielen jedoch nur auf bestimmte Teilaspekte der atomaren Eigenschaften ab.

Theoretische Methoden zur Beschreibung der atomaren Eigenschaften müssen sowohl relativistische Effekte durch die hohe Kernladung als auch die hohen Korrelationen durch die vielen beteiligten Elektronen hinreichend genau beschreiben. Um den Einfluss der relativis-

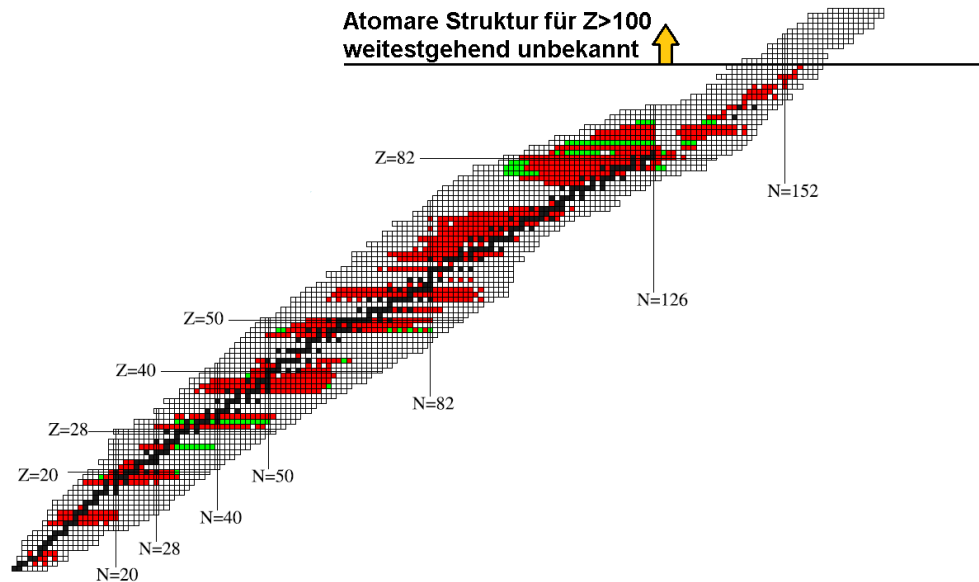


Abbildung 1.1: Nuklidkarte der Isotope bei denen doptische Spektroskopie durchgeführt wurde. Die schwarzen Vierecke markieren spektroskopierte stabile Nuklide und die rot gefärbten Kästchen stehen für spektroskopierte radioaktive Nuklide. Die grün markierten Nukliden wurden untersucht, die Daten wurden allerdings noch nicht veröffentlicht. Jenseits von  $Z > 100$  sind keinerlei laserspektroskopische Informationen zu den atomaren Übergängen vorhanden. Entnommen aus [29]<sup>1</sup>.

tischen Effekte auf die atomaren Zustände und das erste Ionisationspotential zu beschreiben, werden daher numerische Verfahren wie die sogenannte MCDF (Multi-Configuration-Dirac Fock) [4, 21] oder RCC (Relativistic Coupled Cluster) [5, 22] Ansätze und andere verwendet. Fehlende experimentelle Messwerte zu den atomaren Spektren machen allerdings eine unabhängige Überprüfung dieser Modelle im Bereich der schwersten Elemente unmöglich. Experimentell wurde die atomare Struktur bis einschließlich Einsteinium ( $Z=99$ ) in Gasentladungen studiert [23] und die Kenntnisse mit der sog. RIMS (Resonance Ionisation Mass Spectrometry) -Methode vertieft und präzisiert [24, 25]. Ein weiterer Meilenstein im Bereich der schwersten Elemente wurde mit der erfolgreichen Laserspektroskopie an Fermium (Fm,  $Z=100$ ) [26] erreicht. Mit der zur Untersuchung langlebiger Nuklide eigens entwickelten IGRIS (Ion Guide Resonance Ionization Spectroscopy) -Technik [27] konnten in

<sup>1</sup>Reprinted from *Laser spectroscopy for nuclear structure physics*, Progress in Particle and Nuclear Physics, Volume 86, January 2016, Pages 127 - 180, P. Campbell, I.D. Moore, M.R. Pearson, Copyright (2016), with permission from Elsevier.

off-line Messungen für Fm sieben atomare Übergänge identifiziert werden sowie eine grobe Abschätzung des ersten Ionisationspotentials gegeben werden. Damit ist Fm das schwerste Element, für das bisher experimentelle Werte zu atomaren Energielagen vorliegen.

Für die Elemente jenseits von Fermium mit  $Z > 100$  existiert zum jetzigen Zeitpunkt lediglich eine experimentelle Messung des ersten Ionisationspotentials in Lawrencium ( $Z=103$ ), welches mit einer Oberflächenionisationstechnik bestimmt wurde [28].

Die bereits erwähnten chemischen Experimente liefern nur einen indirekten Nachweis der Atomstruktur, daher ist die atomare Struktur im Bezug auf atomare Übergänge in diesem Bereich weitestgehend unbekannt (vgl. Abbildung 1.1). Erschwerend ist allerdings, dass für Elemente mit einer Kernladungszahl von  $Z = 100$  die Produktionsquerschnitte exponentiell mit  $Z$  abnehmen, sodass nur geringe Teilchenraten von wenigen Kernen pro Sekunde oder weniger für Experimente zur Verfügung stehen [30]. Aufgrund der niedrigen Verfügbarkeit dieser exotischen Kerne werden präzise theoretische Vorhersagen der Energielagen atomarer Übergänge benötigt, um den abzusuchenden Bereich für ein Experiment einzugrenzen und so Zeitbedarf für on-line Strahlzeit zu minimieren. Um die theoretischen Modelle zu überprüfen und Licht auf die atomare Struktur der schwersten Elemente zu werfen, wurde auf dem Konzept der lasergetriebenen Resonanzionisation eine hochempfindliche Methode zur Spektroskopie dieser exotischen Elemente entwickelt. Mit der sogenannten **R**adiation **D**etected **R**esonance **I**onization **S**pectroscopy (RADRIS) [1] können die atomaren Eigenschaften von kurzlebigen Alpha-Emittern untersucht werden. Da die Methode selbst bei kleinsten verfügbaren Mengen (etwa 10 Teilchen pro sek) an kurzlebigen Nukliden ( $10 \text{ ms} \leq T_{1/2} \leq 120 \text{ s}$ ) verwendet werden kann, wurde mit der Messung der Isotopieverschiebungen der Americium-Spaltisomere  $^{240f,242f,244f}\text{Am}$  [31–34] eindrucksvoll bewiesen.

In dieser Arbeit wurde die RADRIS-Methode weiterentwickelt und der Weg zur ersten erfolgreichen laserspektroskopischen Untersuchung des Elements Nobelium ( $Z=102$ ) geebnet. Mit etwa vier Atomen pro Sekunde vor der Messapparatur verfügbar zählt Nobelium somit zu den Elementen mit den niedrigsten Produktionsraten, die jemals laserspektroskopisch studiert wurden. Während des Experiments wurde gezielt nach dem Singlett-P Zustand gesucht, der einen starken Grundzustandsübergang besitzen soll und für den es eine Reihe von theoretischen Vorhersagen gibt.

Diese Arbeit gliedert sich in 6 Kapitel. Die Grundlagen dieser Arbeit, bestehend aus dem theoretischen Grundgerüst und des Messprinzips, werden in Kapitel 2 erarbeitet. Kapitel 3 beschäftigt sich mit der technischen Weiterentwicklung der Versuchsaufbauten zur off-line und on-line Spektroskopie an Nobelium. In Kapitel 4 werden die Vorexperimente zur Laserspektroskopie an Nobelium erklärt. Hierbei handelt es sich um Messungen, die mit Ytterbium, dem chemischen Homolog von Nobelium, zur Optimierung der Messmethode im Hinblick auf eine Effizienzmaximierung, dessen Reproduzierbarkeit und zur Bestimmung der Langzeitstabilität durchgeführt wurden. Auf die optische Spektroskopie von Nobelium wird in Kapitel 5 eingegangen. Hierbei konnte zum ersten mal ein atomarer Übergang expe-



rimentell nachgewiesen werden, welcher im Rahmen dieser Arbeit charakterisiert und mit den theoretischen Vorhersagen verglichen wird. Mit Hilfe von Sättigungsmessungen des ersten Schritts wurde im Vergleich mit theoretischen Vorhersagen eine Termklassifizierung der gefundenen atomaren Linie durchgeführt. Desweiteren wurde das Sättigungsverhalten des zweiten Anregungsschritts studiert. Mit Hilfe eines gefundenen Rydbergzustands kann desweiteren eine Obergrenze für das erste Ionisationspotential gegeben werden. Abschliessend wurde die experimentelle Gesamteffizienz der Messapparatur bestimmt und einen Vergleich zu den Abschätzungen der Gesamteffizienz aus Kapitel 4 und [35] gegeben. In Kapitel 6 werden in einem Ausblick die Möglichkeiten zur weiteren Spektroskopie an schweren Elementen gegeben.

Mit der ersten erfolgreichen Messung sowie der erreichten Gesamteffizienz der Methode öffnet sich nun die Möglichkeit, weitere Isotope und Elemente im Bereich der Transfermium-Elemente ( $Z > 100$ ) wie z.B. Lawrencium ( $Z = 103$ ) zu untersuchen.

# Kapitel 2

## Grundlegendes

In diesem Kapitel werden die Grundlagen zum Verständnis des Experiments erarbeitet und dargestellt. Hierbei handelt es sich um die Produktion der schwersten Elemente in Abschnitt 2.1 und in Unterkapitel 2.1.1 die Herstellung des in dieser Arbeit zu untersuchenden Nobeliumisotops  $^{254}\text{No}$ . In Abschnitt 2.2 werden ausgewählte Verfahren zur Beschreibung der atomaren Spektren der Elemente eingeführt, beginnend mit einer Einführung in die Hartree-Fock-Methode in Unterabschnitt 2.2.2. Die relativistische und quantenelektrodynamische Erweiterung der theoretischen Modelle zur Beschreibung schwerer Mehrelektronensysteme in Abschnitt 2.2.3 findet sich in den Unterkapiteln 2.2.3.1 und 2.2.3.2 durch die Einführung der Multi-Configuration-Dirac-Fock (MCDF) und die Relativistic-Coupled-Cluster (RCC) Rechnungen. In Abschnitt 2.3 werden die Grundlagen der Laserresonanzionisation beschrieben. Dabei werden in den Unterabschnitten 2.3.1.1 und 2.3.1.2 die Prozesse spezifiziert, die im Rahmen dieser Arbeit zur Spektroskopie von Ytterbium und Nobelium zum Einsatz kamen. In Kapitel 2.4 werden die verfügbaren theoretischen Vorhersagen zu dem Singlett-P Zustand und des ersten Ionisationspotentials in Nobelium zusammengefasst. Abschliessend werden in Abschnitt 2.5 die Bedingungen an die experimentelle Methode, die notwendigen Lasersysteme und die Puffergaszelle gestellt und eine Einführung in die verwendete experimentelle Methode gegeben.

### 2.1 Produktion der schwersten Elemente

Unter den schwersten Elementen, welche im Rahmen dieser Arbeit unter dem Gesichtspunkt der atomaren Hüllenstruktur betrachtet werden, versteht man Elemente mit hoher Kernladungszahl  $Z \geq 100$ , die aufgrund der zur Stabilisierung des Kerns notwendigen Neutronen  $N$  eine hohe Gesamtmasse  $A = N + Z$  aufweisen. Diese Elemente kommen auf der Erde in der Regel aufgrund der kurzen Lebensdauer nicht als natürliche Elemente vor, sie müssen daher künstlich hergestellt werden. Den Start der Suche nach den Transuranen markiert die erste erfolgreiche Synthese von Neptunium im Jahr 1940 durch den Beschuss von Uran mit Neutronen [36]. Die folgenden schweren Elemente oberhalb von Plutonium mit  $Z = 94$  bis hin zu dem Element Fermium mit  $Z = 100$  lassen sich auch über den sukzessiven Einfang von Neutronen und den anschliessenden  $\beta^+$ -Zerfall in Hochflussreaktoren [37] herstellen. Diese Technik wurde zur Herstellung der  $^{255}\text{Fm}$ -Probe am Oak Ridge National Laboratory [38] angewandt. Möglich ist dies jedoch nur, solange sich als Endpunkt ein  $\beta^+$ -Strahler findet. Zum jetzigen Zeitpunkt ist dies für die Elemente oberhalb von Fermium mit  $Z=100$

nicht der Fall. Daher müssen für die Produktion von Elementen mit  $Z > 100$  andere Wege eingeschlagen werden. Heutzutage lassen sich die bekannten Elemente von Mendelevium mit  $Z=101$  bis hin zu Element 118, über Fusionsreaktionen an Beschleunigeranlagen erzeugen [3, 30, 39–42]. Hierfür werden hochgeladene Projektilkerne (PK) auf relativistische Geschwindigkeit beschleunigt und auf ruhende Targetkerne (TK) geschossen. Kollidieren beide Kerne nun miteinander, können sie verschmelzen und einen angeregten Verbundkern ( $VK^*$ ) erzeugen, sofern die Coulombbarriere überwunden wird



Der für die Reaktion charakteristische  $Q$ -Wert, auch Massendifferenz genannt da  $Q = m_{PK} + m_{TK} - m_{VK}$ , ist für die Produktion von den schwersten Elementen üblicherweise negativ, und die Massendifferenz muss durch kinetische Energie bereitgestellt werden. Die Energiebilanz der Fusion ergibt sich aus der Gleichheit der Summe aus Masse und kinetischer Energie des Projektilkerns mit der Masse und kinetischer Energie des Verbundkerns plus Anregungsenergie  $E^*$ .

$$m_{PK} + m_{TK} + E_{kin-PK} + E_{kin-TK} = m_{VB} + E_{kin-VB} + E^* .$$

Subtrahiert man die Masse des Verbundkerns und ersetzt man dann  $Q = m_{PK} + m_{TK} - m_{VK}$ , folgt mit  $E_{kin-TK} = 0$ , da der Targetkern ruht:

$$E^* = Q + E_{kin-PK} - E_{kin-VB} .$$

Die innere Anregungsenergie ist also abhängig von dem  $Q$ -Wert der Reaktion, der kinetischen Energie des Projektilkerns  $E_{kin-PK}$  und der kinetischen Energie des Verbundkerns  $E_{kin-VB}$ . Unterteilt werden Fusionsreaktionen nach der inneren Anregungsenergie des Verbundkerns. Als *heiße* Fusion bezeichnet man üblicherweise die Verschmelzung von sehr leichten Projektilkernen, wie zum Beispiel Sauerstoffkerne, mit sehr schweren Targetkernen, z.B. Americiumkerne. Aufgrund der Impulserhaltung ist zum Einen bei dieser Reaktion die kinetische Energie des Verbundkerns sehr klein. Zum Anderen ist die Massendifferenz  $Q$  klein, sodass  $E^*$  sehr gross und der Verbundkern sehr stark angeregt ist. Üblicherweise liegt hier die innere Anregungsenergie im Bereich von  $E^* \approx 40 \text{ MeV}$ .

Im Gegensatz dazu verwendet man den Begriff *kalte* Fusion bei Verschmelzungen von schwereren Projektilkernen, unter anderen Kalzium, mit Zielkernen wie Blei. Sowohl ein höherer Energieübertrag als auch eine grössere Massendifferenz  $Q$  sorgen für eine geringere innere Anregungsenergie  $E^*$ . Diese liegt dabei bei einer kalten Fusionsreaktion etwa bei  $E^* \approx 20 \text{ MeV}$ .

Aufgrund der Instabilität des Verbundkerns findet im nächsten Schritt eine Abgabe der inneren Energie statt. Dies geschieht durch spontane Emission von Protonen, Neutronen,  $\alpha$ -Teilchen,  $\gamma$ -Strahlung, Elektronen oder auch durch Spaltung in zwei leichtere Kerne. Der

Einfachheit halber wird im Folgenden für den Fall der kompletten Fusion nur eine Emission von Neutronen berücksichtigt, da die anderen Prozesse für die vorliegende Arbeit nicht relevant sind. Je nach verfügbarer Menge an innerer Anregungsenergie emittiert der Verbundkern zwischen 1-2 Neutronen im Fall niedriger innerer Anregungsenergie ( $\approx 20\text{MeV}$ ) und bis zu 3-6 Neutronen im Fall hoher innerer Anregungsenergie ( $\approx 40\text{MeV}$ ). Der nun abgeregte Verbundkern wird als Verdampfungskern (Evaporation Residue) bezeichnet und ist das Endprodukt der Fusionsreaktion. Da die Anzahl der abgedampften Neutronen und damit das als Verdampfungskern zurückbleibende Zielisotop von der inneren Anregungsenergie  $E^*$  abhängig ist, lässt sich der Wirkungsquerschnitt, also die Wahrscheinlichkeit das sich das gewünschte Isotop nach der Evaporation der Neutronen zurückbleibt, durch die geeignete Wahl der kinetischen Energie der Projektilkerne beeinflussen. Weitergehende Informationen zu verschiedenen Kernreaktionen lassen sich in [42, 43] nachschlagen.

### 2.1.1 Herstellung des Elements Nobelium

Schritt für Schritt wurde die Suche nach den Transfermium-Elementen ( $Z > 100$ ) intensiviert, bis dann im Jahr 1957 das erste Mal das Element Nobelium mit der Kernladungszahl ( $Z=102$ ) erfolgreich synthetisch hergestellt werden konnte [44]. Inzwischen sind insgesamt 13 Isotope und zwei Isomere des Elements Nobelium [45] bekannt. Die Massenzahl reicht dabei von  $A = 250 - 262$  mit einer Spanne von Halbwertszeiten von  $T_{1/2} = 4\mu\text{s}$  für  $^{250}\text{No}$  bis zu  $T_{1/2} = 58\text{min}$  im Falle von  $^{259}\text{No}$ . Dabei ist die einzige Zugangsmöglichkeit dieses schwersten Elements durch die Produktion in kompletten Fusionsreaktionen mit einem Teilchenbeschleuniger. Das Element Nobelium lässt sich mit verschiedenen Fusionsreaktionen (aufgelistet in [46]) oder aus dem Zerfall schwererer Elemente herstellen. Im Folgenden wird lediglich die in dieser Arbeit verwendete Fusionsreaktion zur Herstellung von Nobelium durch den Beschuss von Folien aus Bleisulfid mit Kalzium beschrieben



Hierbei handelt es sich um eine kalte Fusionsreaktion, in dessen Verlauf zwei Neutronen vom Verbundkern abgedampft werden und als Verdampfungskern  $^{254}\text{No}$  [47] zurückbleibt. Abbildung 2.1 zeigt eine HIVAP (Der Code HIVAP erlaubt die Extraktion von Wirkungsquerschnitten von Fusionsreaktionen [48, 49]) -Rechnung der Abhängigkeit des Produktionsquerschnitts von der kinetischen Energie der Kalziumkerne im Vergleich mit gemessenen Daten. Mit einer kinetischen Energie von  $4,55\text{ MeV/u}$  (einer inneren Anregungsenergie  $E^* = 23,35\text{ MeV}$  entsprechend) für die Kalziumkerne wurde ein Produktionsquerschnitt von  $\sigma_{^{254}\text{No}} \approx 2\mu\text{ barn}$  [50–52] gemessen, was einer Produktionsrate von  $17\text{ }^{254}\text{No}$ -Kerne pro Sekunde entspricht. Bei dieser kinetischen Energie ist der Wirkungsquerschnitt der anderen Nobeliumisotope mit einem anderen Zerfallskanal laut Abbildung 2.1 mit  $\sigma_{^{255}\text{No}} \approx 7\text{ nbarn}$  und  $\sigma_{^{253}\text{No}} \approx 0,5\text{ nbarn}$ . Daraus ergeben sich Produktionsraten von  $0,059\text{ /s}$  für  $^{255}\text{No}$  und  $0,0042\text{ /s}$  für  $^{253}\text{No}$ . Die Produktionsraten sind damit um einen Faktor 288 bzw. 4047 kleiner als die Produktionsrate von  $^{254}\text{No}$  und werden daher im Folgenden vernachlässigt.

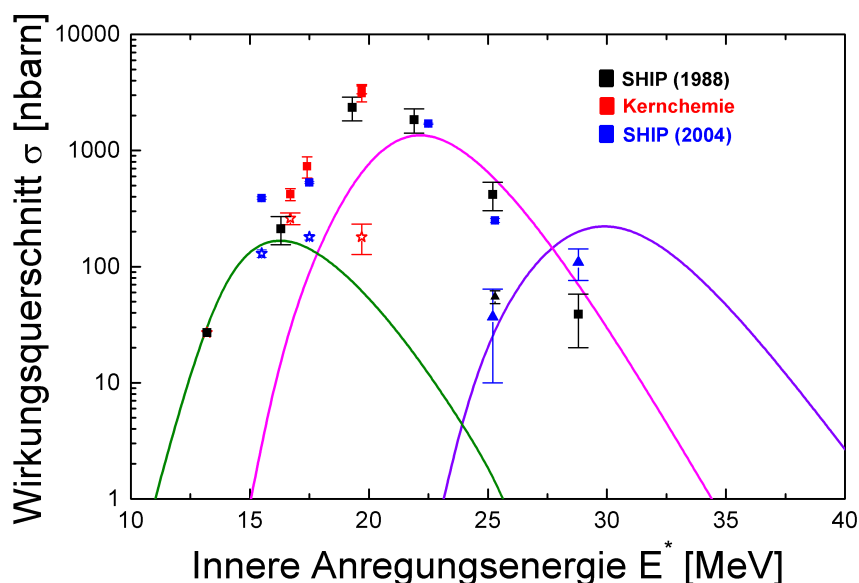


Abbildung 2.1: Produktionsquerschnitte in Abhängigkeit der Zerfallskanäle der Reaktion  $^{208}\text{Pb} + ^{48}\text{Ca} = ^{256}\text{No}^*$  gegenüber der inneren Anregungsenergie  $E^*$  des Verbundkerns. Dargestellt sind die experimentellen Messungen (Stern =  $^{255}\text{No}$ , Quadrat =  $^{254}\text{No}$ , Dreieck =  $^{253}\text{No}$ ) aus [50, 51], und HIVAP-Rechnungen (durchgezogene Linien: grün =  $^{255}\text{No}$ , magenta =  $^{254}\text{No}$  und lila =  $^{253}\text{No}$ ) aus [51].

## 2.1.2 Herstellung des Elements Ytterbium

Ytterbium ist das leichtere Homolog des Elements Nobelium und kommt in der Natur in 7 stabilen Isotopen vor ( $^{168,170,171,172,173,174,176}\text{Yb}$ ). Zusätzlich sind bis zum jetzigen Zeitpunkt 25 Isotope und 8 Isomere bekannt. Die Massenzahl hat dabei eine Spanne von  $A = 151$ -180 mit Halbwertszeiten von  $T_{1/2} = 30$  ms für  $^{152m}\text{Yb}$  bis zu  $T_{1/2} = 32$  Tage für  $^{169}\text{Yb}$ . Ausgewählt für die Experimente wurde das Ytterbiumisotop  $^{155}\text{Yb}$  mit einer Halbwertszeit von  $T_{1/2} = 1,75$  s und einer Zerfallswahrscheinlichkeit durch die Emission eines  $\alpha$ -Teilchens von 89%. Produziert wird  $^{155}\text{Yb}$  [53] über den Beschuss von Zinnfolien mit den Kalziumpartikeln über die Fusionsreaktion [40]



Bei dieser Reaktion werden im Verlauf insgesamt 5 Neutronen vom Verbundkern abgedampft, sodass im Folgenden als Verdampfungskern  $^{155}\text{Yb}$  zurückbleibt. Abbildung 2.2 zeigt anschaulich eine HIVAP-Rechnung zur Bestimmung des Wirkungsquerschnitts der Produktion in Abhängigkeit der kinetischen Energie der Kalziumpartikel. Für eine kinetischen Ener-

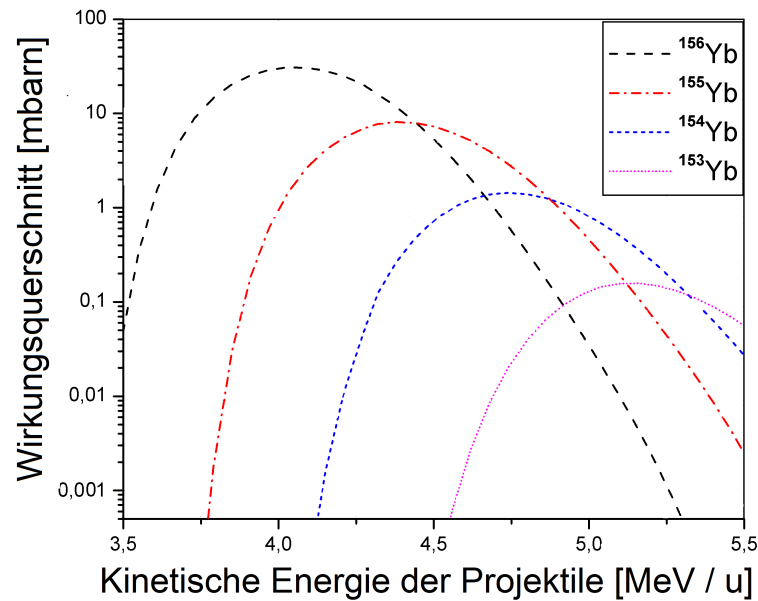


Abbildung 2.2: Produktionsquerschnitte der Edukte der Reaktion  $^{112}\text{Sn} + ^{48}\text{Ca} = ^{160}\text{Yb}^*$  gegenüber der kinetischen Energie der Kalziumpartikel. Die gestrichelten Linien markieren die verschiedenen Evaporation Residuen, die je nach Zerfallskanal des Verbundkerns übrig bleiben. Die HIVAP-Rechnung wurde aus [51] entnommen.

gie von 4,55 MeV/u für die Kalziumpartikel ergibt sich aus Abbildung 2.2 ein Wirkungsquerschnitt für die Produktion von  $^{155}\text{Yb}$  zu  $\sigma_{^{155}\text{Yb}} = 7$  mbarn. Bei dieser kinetischen Energie werden desweiteren die Ytterbiumisotope  $^{154}\text{Yb}$  und  $^{156}\text{Yb}$  mit einem Wirkungsquerschnitt von  $\sigma_{^{154}\text{Yb}} = 0,8$  mbarn und  $\sigma_{^{156}\text{Yb}} = 4$  mbarn produziert.

## 2.2 Atomare Spektren der Elemente

In diesem Kapitel werden Ansätze zur Beschreibung und zum Verständnis von atomaren Spektren von Mehrelektronensystemen erarbeitet.

### 2.2.1 Elektronen-Schalenstruktur der Elemente

Zur Charakterisierung der Elektronen wird im Folgenden die Schalenkennzeichnung eingeführt. Hierbei zählen Elektronen mit den gleichen Quantenzahlen  $n$  [54, 55] und  $l$  zu einer

Schale bzw. Unterschale [56, 57]. Elektronen mit der gleichen Hauptquantenzahl  $n$  füllen eine Schale mit der maximalen Anzahl von

$$2n^2 = \sum_{l=0}^{n-1} 2(2l+1)$$

und die Unterschale wird durch die Drehimpulsquantenzahl  $l$  bestimmt. Die Nummerierung startet mit der K-Schale mit  $n = 1$  und wird alphabetisch fortgesetzt. Erreicht eine Schale bzw. Unterschale seine maximale Anzahl an Elektronen, so nennt man diese geschlossen. Die ersten beiden Schalen sind die  $s$ - und  $p$ -Schale mit  $l = 0$  bzw. 1 und diese können entsprechend der Entartung 2 bzw. 6 Elektronen beherbergen. Die  $d$ -Schale kann insgesamt 10 Elektronen aufnehmen und in der  $f$ -Schale ist Platz für bis zu 14 Elektronen. Die weiteren Schalen werden alphabetisch benannt. Bis auf einige Ausnahmen verläuft dabei die Besetzung der Madelung-Regel entsprechend und genügt den Hundschen Regeln. Die Madelung-Regel [58] besagt, dass zuerst die Orbitale mit kleinerem  $n + l$ -Wert und dann erst die folgenden Orbitale mit größerem  $n + l$ -Wert aufgefüllt werden. Ein Spezialfall ist es, wenn  $n + l$  in der Summe gleich sind. Dann werden die Orbitale mit kleinerem  $n$  bevorzugt. Den Hundschen Regeln [58, 59] folgend werden die Orbitale mit gleicher Energie erst einfach und danach erst doppelt besetzt. Daraus ergibt sich folgendes Besetzungsschema

$$\begin{aligned} 1s \rightarrow 2s \rightarrow 2p \rightarrow 3s \rightarrow 3p \rightarrow 4s \rightarrow 3d \rightarrow 4p \rightarrow 5s \rightarrow 4d \rightarrow 5p \rightarrow 6s \\ \rightarrow 4f \rightarrow 5d \rightarrow 6p \rightarrow 7s \rightarrow 5f \rightarrow 6d \rightarrow \dots \end{aligned} \quad (2.4)$$

Das Periodensystem der Elemente kann auch über die Besetzungscharakteristik beschrieben werden. Eine neue Periode wird dabei durch die Besetzung des  $s$ -Orbitals einer neuen Schale ( $1s, 2s, 3s, 4s$  etc.) gekennzeichnet. Innerhalb dieser Periode findet in den Hauptgruppen 1-8 zunächst eine Auffüllung der  $s$ -Orbitale und anschliessend der  $p$ -Orbitale statt (Ausnahme hier das Edelgas Helium in der Hauptgruppe 8, da bei  $n = 1$  noch kein  $p$ -Orbital zur Verfügung steht). Die Nebengruppen zeichnen sich durch die Besetzung der  $d$ -Orbitale aus. Eine weitere Sonderstellung erhalten die Lanthanide und Aktinide, bei denen die  $f$ -Orbitale aufgefüllt werden.

Im Periodensystem gibt es allerdings zahlreiche Elemente, bei denen die Besetzung der Elektronenorbitale von der nominellen Struktur des Madelung-Prinzips abweichen [58]. Als Beispiel ist dies an dem Übergangsmetall Kupfer gezeigt. Laut dem Madelung-Prinzip würde man bei Kupfer eine elektronische Struktur von  $[\text{Ar}] 3d^9 4s^2$  erwarten. Tatsächlich aber findet sich Kupfer in der Grundzustandskonfiguration  $[\text{Ar}] 3d^{10} 4s$ , die  $3d$ -Unterschale wird also vollkommen aufgefüllt, da sie somit besonders stabil ist.

Eine andere starke Abweichung findet sich bei den Mitgliedern der Aktiniden Actinium, Thorium, Protactinium, Uran und Neptunium. Das Madelung-Prinzip ordnet hier eine kontinuierliche Auffüllung der  $5f$ -Schale an, jedoch werden für Actinium und Thorium zuerst die  $6d$ -Schale gefüllt, und erst mit dem Element Protactinium findet eine Auffüllung der  $5f$ -Schale statt, wobei für Protactinium sich lediglich 1 Elektron in der  $6d$ -Schale und 2

Elektronen in der 5f-Schale befinden. Aufgehoben wird dies bei dem Element Plutonium, wo sich 6 Elektronen in der 5f-Schale befinden [58].

### 2.2.2 Hartree-Fock-Methode

Eine Beschreibung von Mehrelektronensystemen ist die sog. Hartree-Fock-Methode, die auf der Zentralfeldnäherung basiert und eine näherungsweise Berechnung von Wellenfunktionen und Orbitalenergien von Mehrelektronensystemen erlaubt. Eine genaue Beschreibung dieser Methode findet sich dabei in [60, 61], sodass an dieser Stelle die Hartree-Fock Methode zusammenfassend beschrieben wird.

Ausgehend von der Slater-Determinanten [40, 60, 62], die das Pauli-Prinzip [63] erfüllt,

$$\psi(1, \dots, N) = \frac{1}{\sqrt{N!}} \det \begin{bmatrix} \varphi_1(1) & \varphi_1(2) & \dots & \varphi_1(N) \\ \varphi_2(1) & \varphi_2(2) & \dots & \varphi_2(N) \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \varphi_M(1) & \varphi_M(2) & \dots & \varphi_M(N) \end{bmatrix} \quad (2.5)$$

erhält man mit Verwendung des Produktansatzes zur Separation der Gesamtwellenfunktion  $\psi_i = \phi_i(r) \cdot \xi_i(\eta)$  in einen radial abhängigen  $\phi_i(r)$  und einen spinabhängigen  $\xi_i(\eta)$  Teil der Gesamtwellenfunktion die Hartree-Fock-Gleichungen für ein N-Elektronen-System im Zentralfeldpotential durch Variation des radialen Anteils der Ein-Elektronen-Wellenfunktionen  $\phi_i(r)$  bei gleichzeitiger Minimierung der Gesamtenergie (**Rayleigh-Ritz-Prinzip** [64]) [60]

$$\begin{aligned} -1/2 \nabla_i^2 \phi_i(r) + V_{ext}(r) \phi_i(r) + \left( \sum_j^N \int \frac{\phi_j^*(r') \phi_j(r')}{|r - r'|} dr' \right) \phi_i(r) \\ - \sum_{j \text{ spins} //} \left( \int \frac{\phi_j^*(r') \phi_i(r')}{|r - r'|} dr' \right) \phi_j(r) = \epsilon_i \phi_i(r). \end{aligned} \quad (2.6)$$

Der erste Term beschreibt dabei die kinetische Energie des  $i$ -ten Elektrons und  $V_{ext}$  ist das Coulombpotential des Kerns [60].

$$\left( \sum_j^N \int \frac{\phi_j^*(r') \phi_j(r')}{|r - r'|} dr' \right) = V_{Hartree}. \quad (2.7)$$

Das erste Summenintegral 2.7 ist ein Korrekturterm, der die mittlere Coulomb-Abstoßung der restlichen  $j$ -Elektronen berücksichtigt. In der Literatur wird dieser Korrekturterm auch oft als Hartree Potential bezeichnet [60].

$$\sum_{j \text{ spins} //} \left( \int \frac{\phi_j^*(r') \phi_i(r')}{|r - r'|} dr' \right) = V_{Austausch} \quad (2.8)$$



Das zweite Summenintegral 2.8 beschreibt ein effektives Austauschpotential, welches dem Pauli-Prinzip gerecht wird und lediglich auf Elektronen  $i$  und  $j$  mit parallelem Spin einen Einfluss ausübt. Zu beachten ist, dass der Austauschterm ein negatives Vorzeichen hat und entgegengesetzt zur Coulombabstoßung wirkt [60]. Die negative Austauschenergie verringert somit die Coulombabstoßung der Elektronen untereinander und führt zu einer Energieverringern, was gleichzeitig einer stärkeren Bindung an den Atomkern entspricht. Im Gegensatz zu den anderen Termen existiert für die Austauschwechselwirkung kein klassisches Analogon. Zur Lösung der Hartree-Fock-Gleichungen schreibt man diese um in [60]

$$\begin{aligned} -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2 u_{nl}}{dr^2} + \left( \frac{l(l+1)\hbar^2}{2mr^2} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r} [Z - Y_{nl}(r)] + \epsilon_{nl,nl} \right) u_{nl} \\ = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r} X_{nl}(r) + \sum_{n'} \epsilon_{n'l,nl} u_{nl}. \end{aligned} \quad (2.9)$$

Bei den von den radialen Eigenfunktionen  $u_{nl}$  abhängigen Funktionen  $Y_{nl}(r)$  und  $X_{nl}(r)$  handelt es sich um Korrekturen zum Coulombpotential und zu der Austauschfunktion [60]. Die Lösung der Gleichung 2.9 erfolgt über ein iteratives Verfahren. Hierbei wählt man geeignete Eigenfunktionen  $u_{n'l'}$  und berechnet damit die Potential und Austauschfunktionen  $Y_{nl}(r)$  und  $X_{nl}(r)$  [60]. Dadurch bestimmt man Gleichung 2.9 für das Orbital  $u_{nl}$  und kann im nächsten Schritt numerisch integriert werden. Man erhält dadurch einen neuen, im Optimalfall verbesserten Satz an Funktionen, mit denen erneut  $Y_{nl}(r)$  und  $X_{nl}(r)$  berechnet werden. Dies wird solange durchgeführt, bis Selbstkonsistenz erreicht ist [60].

Der größte Nachteil der Hartree-Fock-Methode ist dabei die Vernachlässigung von sogenannten Korrelationen, z.B. der Coulomb Korrelation durch die Verwendung eines gemittelten Zentralpotentials [60]. Dies führt dazu, dass die Energien, die mit der Hartree-Fock-Methode berechnet werden, nicht exakt sind, sondern lediglich eine grobe Näherung darstellen.

### 2.2.3 Relativistische Erweiterung auf die schwersten Elemente

Das Element Nobelium liegt mit seiner Ordnungszahl von  $Z = 102$  im Bereich der sog. Transfermium-Elemente, die nicht mehr über Neutroneneinfangprozesse erbrütet werden können (vgl. Abschnitt 2.1). Zusätzlich erschweren die hieraus resultierenden geringen Probenmengen bzw. Teilchenraten in der on-line Produktion eine erfolgreiche Durchführung laserspektroskopischer Experimente an diesem Element. Da keine experimentellen Informationen zu Anregungsschemata vorliegen, muss bei der Etablierung eines ersten Anregungsschemas auf theoretische Berechnungen zurückgegriffen werden. Zur Beschreibung komplexer Mehrelektronensysteme sind jedoch einfache Ansätze nicht mehr ausreichend, da die Geschwindigkeit der gebundenen Elektronen  $v$  proportional zu  $Z$  sind und somit eine korrekte Berücksichtigung relativistischer und quantenelektrodynamischer Effekte zwingend notwendig ist. Als Beispiel für die Diskrepanz, die sich in schwereren Mehrelektronensystemen bei Nichtbeachtung relativistischer und quantenelektrodynamischer Effekte ergibt,

lässt sich an der energetischen Lage des  $^2D$  - Niveaus in Gold ( $Z=79$ ) zeigen. Mit einer nichtrelativistischen Betrachtung des  $^2D$  - Niveaus erhält man eine Anregungsenergie, die mit  $E_{2D} = 5,3$  eV über dem  $^2S$  - Grundzustand liegt [22]. Die relativistische Kontraktion der Wellenfunktionen aber sorgt für eine Stabilisierung des  $6s$  - Orbitals, was dazu führt, dass die experimentell bestimmten Anregungsenergien des aufspaltenden  $^2D$  - Übergangs mit  $E_{2D} = 1,14$  bzw.  $2,65$  eV [65] oberhalb des  $^2S$  - Grundzustands sehr viel tiefer liegen. Bei den superschweren Elementen können diese Effekte sogar für eine Änderung der Grundzustandskonfiguration sorgen. Betrachtet man die theoretischen Vorhersagen für das schwerere Homolog von Gold, Röntgenium mit  $Z=111$ , so wurde eine Grundzustandskonfiguration von  $[Rn]5f^{14} 7s^2 6d^9$  anstelle der erwarteten  $[Rn]5f^{14} 6d^{10} 7s$  ermittelt [66]. Der Grund hierfür liegt in der relativistischen Stabilisierung des  $7s$  Orbitals bei gleichzeitiger Destabilisierung des  $6d$  Orbitals [67]. Eine akkurate Berücksichtigung von relativistischen und quantenelektrodynamischen Effekten erscheint aufgrund des starken Einflusses gerade bei den schwersten Elementen des Periodensystems zwingend notwendig.

Als Ergebnisse sollten diese theoretischen Rechnungen bei der Vorhersage von atomaren Übergängen deren jeweilige energetische Lage, elektronische Konfiguration und die Lebensdauer angeben. Damit die Suche nach atomaren Übergängen kein hoffnungsloses Unterfangen wird und die abzusuchenden spektralen Bereiche sinnvoll eingegrenzt werden können, sollten die Angaben möglichst präzise sein. Aktuell werden diese Forderungen nur durch zwei Ansätze befriedigend erfüllt, zum Einen durch die Multi-Configuration-Dirac-Fock (MCDF) Methode und zum Anderen durch die Coupled-Cluster (CC) Methoden. Im Folgenden werden beide Ansätze zusammenfassend beschrieben, eine genauere Beschreibung der MCDF-Modelle findet sich in [4, 6, 21, 60, 68] und die jeweiligen CC-Methoden sind in [5, 8, 22, 66, 67, 69–71] beschrieben.

### 2.2.3.1 Multi Configuration Dirac Fock - MCDF

Die Multi-Configuration-Dirac-Fock Methode ist eine relativistische und quantenelektrodynamische Erweiterung der Hartree-Fock Methode zur Beschreibung offenschaliger Atome [21]. Auch hierbei handelt es sich um ein *ab-initio* Verfahren.

Den Startpunkt der MCDF bildet dabei die *Einteilchen* Dirac-Gleichung mit dem Dirac-Coulomb-Breit-Hamiltonoperator [21]

$$H_{DCB} = H_{DC} + \sum_{i>j}^N B_{ij} \quad (2.10)$$

mit dem Dirac-Coulomb Hamiltonoperator  $H_{DC} = \sum_i h_D(r_i) + \sum_{i>j} \frac{1}{r_{ij}}$ , den Ein-Elektronen Dirac-Operator  $h_D$  und dem Breit-Korrekturterm  $B_{ij}$  [21, 60].

Der Breit-Korrekturterm steht dabei für die relativistischen Korrekturen zur Elektron-Elektron Wechselwirkung und hat im Falle der Frequenzunabhängigkeit die Form [21]

$$B_{ij} = -1/2r_{ij} \cdot ((\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \boldsymbol{\alpha}_j + (\boldsymbol{\alpha}_j \cdot \mathbf{r}_{ij}) \cdot (\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})/r_{ij}^2)) \quad (2.11)$$

mit den Dirac-Matrizen  $\boldsymbol{\alpha}_i$ . Hierbei ist zu beachten, dass alle Beiträge  $\alpha^4 Z^3$  vernachlässigt werden [21].

Der MCDF Ansatz beschreibt eine gebundene atomare Wellenfunktion mit einer Linearkombination von sog. Konfigurationsfunktionen (CSF, von engl. **C**onfiguration **S**tate **F**unction) [21]

$$\psi(PJM) = \sum_v^A c_v |\gamma_v PJM\rangle \quad (2.12)$$

mit  $A$  als die Anzahl der Konfigurationsfunktionen und  $c_v$  als der Mischungskoeffizient der jeweiligen Basis [21]. Zur Berechnung von komplexeren Atomstrukturen in schweren Atomen ist oftmals ein Satz von mehreren 10000 einzelnen Konfigurationsfunktionen notwendig. Die Optimierung des Lösungsansatzes findet über die Berechnung des Einflusses von dem Atomkern und seinen  $N-1$  Elektronen auf jedes einzelne Elektron statt. Die so gewonnenen, verbesserten Wellenfunktionen werden ihrerseits bis zur Selbstkonsistenz optimiert, d.h. es finden sich keine wesentlichen Abweichungen zwischen der  $n$  ten und  $n-1$  ten optimierten Wellenfunktion mehr.

### 2.2.3.2 Relativistic Coupled Cluster - RCC

Wichtig für eine akkurate Beschreibung schwerer Mehrelektronensysteme ist die Berücksichtigung der Interaktion zwischen den Elektronen untereinander, den sog. Elektronenkorrelationen. Ein Ansatz, der diese Elektronenkorrelationen berücksichtigt, ist die sog. Coupled-Cluster (CC)-Methode, die man auch als Exponentialformalismus ( $e^S$ ) bezeichnet. Die Wellenfunktionen  $\psi_{CC}$  werden dabei über den Anregungsoperator  $S$  mit den Lösungen der Hartree-Fock Gleichungen  $\psi_0$  verknüpft [66, 67]

$$\psi_{CC} = e^S \cdot \psi_0. \quad (2.13)$$

Ausgangspunkt ist wie auch im Fall der MCDF-Rechnungen der Dirac-Coulomb-Breit-Hamiltonoperator aus Gleichung 2.10. Bei der sog. **Fock space coupled cluster approach** (FSCCA) [67, 70] wird der dem Hamiltonoperator  $H_{RCC}$  zugeordnete Raum in einen  $K$ -dimensionalen Unterraum  $P$  und einen zu ihm orthogonalen Unterraum  $Q$  mit  $Q = 1 - P$  transformiert. Die Energieeigenwerte des Systems bestimmt man hierbei durch Diagonalisieren des dem Unterraum  $P$  korrespondierenden effektiven Hamiltonoperator  $H_{eff}$ . Dies funktioniert jedoch nur, sofern alle im Modellraum  $P$  angewendeten Funktionen konvergieren. Dieses Problem wird durch die **Intermediate Hamiltonian Coupled Cluster Method** (IHCCM) gelöst [71].

Durch die Verwendung der oben genannten MCDF und CC- Modelle lassen sich die energetischen Lagen von Zuständen mit der zugehörigen Konfigurationszusammensetzung, deren Lebensdauer bzw. Einstein-Koeffizient  $A_{ki}$  und das elementspezifische Ionisationspotential berechnen.

### Unsicherheiten der theoretischen Modellrechnungen

Um eine Aussage über die Genauigkeit der Berechnungen zu erhalten, werden die Modellansätze im Falle der schwersten Elemente mit  $Z > 100$ , für die bisher keine experimentellen Daten zu den energetischen Positionen der atomaren Übergänge vorhanden sind, an dem jeweiligen chemischen Homolog getestet und die Resultate mit den experimentellen Daten verglichen. Aus dem Vergleich ergeben sich dann die Unsicherheiten, die man für die Vorhersagen für die schwersten Elemente postuliert. Diese schränken den experimentell abzusuchenden Bereich ein, und im Falle eines Fundes eines atomaren Übergangs können die experimentellen Daten als Basis zur Verbesserung der theoretischen Modelle dienen.

Die Genauigkeiten der Modellvorhersagen hängen sehr stark von der Grundzustandskonfiguration des betrachteten Elements ab, jedoch aber auch von der Anzahl der zur Berechnung der energetischen Lage der atomaren Übergänge verwendete Anzahl an Basisfunktionen. Dies führt dazu, dass selbst für die schwersten Elemente, die eine relativ einfache Grundzustandskonfiguration haben, Beimischungen aus anderen Konfigurationen, bei denen sich die Valenzelektronen in anderen Zuständen befinden, zu berücksichtigen sind. Dies liegt daran, dass der energetische Abstand der äusseren Unterschalen relativ klein ist. Im Folgenden wird dies beispielhaft an Lawrencium ( $Z=103$ ), bei dem sich drei Valenzelektronen in der Konfiguration  $7s^26d$  und 14 Elektronen in der  $5f$  - Schale befinden, gezeigt. Zur Berechnung des atomaren Übergangsspektrum von Lawrencium in [72] mit der **IHCCM**-Methode wurde ein Satz aus  $37s$ ,  $31p$ ,  $26d$ ,  $21f$ ,  $16g$ ,  $11h$  und  $6i$  Basisorbitalen verwendet, bei dem schliesslich Konvergenz erreicht wurde. Da auch für Lawrencium keine experimentellen Daten zu den energetischen Positionen der atomaren Übergänge vorhanden sind, wurden die Unsicherheiten aus dem Vergleich der theoretischen Rechnungen mit den experimentellen Daten des chemischen Homolog Lutetium bestimmt und für Lawrencium übernommen. Die Unsicherheit in den Vorhersagen wird mit einem Wert von  $\pm 800\text{cm}^{-1}$  angegeben. Für die **MCDF**-Rechnungen aus [73] wird eine Unsicherheit von  $\pm 800\text{cm}^{-1}$  bis  $\pm 1600\text{cm}^{-1}$ , abhängig von dem betrachteten atomaren Zustand angegeben.

Noch komplizierter in der Betrachtung solcher Elemente wird es aus theoretischer Sicht (MCDF), wenn im Grundzustand des Elements offene  $f$ -Schalen, im speziellen Fall halbgefüllte  $f$ -Schalen vorliegen. Dies resultiert in einer höheren Anzahl an zu berücksichtigenden Konfigurationen und Schalen und dementsprechend steigt der Aufwand der notwendigen numerischen Kapazität an.

Einen großen Anteil an den Unsicherheiten der theoretischen Vorhersagen tragen dabei die Korrekturen [6], die sich vor allen aus den Elektronenkorrelationen, z.B. der Coulombkorrelation, und abgeschwächt aus QED-Effekten, in niedrigster Ordnung die Selbstenergie und

die Vakuumpolarisation, ergeben. Bisher ist es allerdings nur möglich, diese Effekte in stark genäherter Form eines effektiven Potentials in den Rechnungen zu berücksichtigen [73], z.B. die Vakuumpolarisation in Form eines Uehling-Potentials [74]. QED-Effekte höherer Ordnungen werden in der Regel vernachlässigt [69, 75, 76].

## 2.2.4 Rydbergzustände und Ionisationspotential

Beschrieben werden in diesem Kapitel Rydbergzustände und deren Zusammenhang zum Ionisationspotential [60, 77, 78]. Dabei versteht man unter einem Rydbergzustand, grob gesagt, einen quantenmechanischen Zustand des Systems (Atom, Ion oder Molekül), bei dem eines der äussersten Elektronen in sehr viel größerer Entfernung um den Kern kreist als im Grundzustand. Der Abstand ist dabei durch die Hauptquantenzahl  $n$  gekennzeichnet und durch die quadratische Abhängigkeit von Selbiger sind Umlaufradien bei entsprechendem  $n$  bis zu einigen Mikrometern möglich<sup>2</sup>. Aufgrund der großen Entfernung zum Kern ist es selbst für komplexe atomare Strukturen möglich, das Kernpotential als ein effektives, durch  $N - 1$  Elektronen modifiziertes zentralsymmetrisches Potential anzugeben und Analogien zum Wasserstoffatom herzustellen. Diese hochangeregten Elektronenzustände sind daher besonders interessant für atomphysikalische Studien, da aus der Vermessung der Rydbergzustände, die zu einer Serie gehören, Aussagen über fundamentale Eigenschaften wie das Ionisationspotential des betrachteten Elements getroffen werden können. Die Energielagen der Rydbergzustände [60, 77, 79] sind demnach für wasserstoffähnliche Atome durch eine grosse Hauptquantenzahl  $n$  charakterisiert und lassen sich mit dem Ionisationspotential  $E_{IP}$  beschreiben durch

$$E_n = E_{IP} - \frac{R_M \cdot Z^2}{n^2}. \quad (2.14)$$

Hierbei ist  $R_M$  die massenreduzierte Rydbergkonstante unter Berücksichtigung der reduzierten Masse im Schwerpunktsystem

$$R_M = \left( \frac{m_{\text{kern}}}{m_{\text{elektron}} + m_{\text{kern}}} \right) \cdot R_W \quad (2.15)$$

mit der Rydbergkonstanten  $R_W = 109737.31568539(55)\text{cm}^{-1}$  [80]. Die wichtigsten Eigenschaften von Rydbergatomen lassen sich direkt auf ihre Abhängigkeit zur Hauptquantenzahl  $n$  zurückführen und sind in Tabelle 2.1 aufgetragen. Gleichung 2.14 gilt strenggenommen nur für wasserstoffähnliche Atome und muss für schwerere Atome modifiziert werden, da hochangeregte Elektronen in Rydbergzuständen für schwerere Atome eine nichtverschwindende Aufenthaltswahrscheinlichkeit in der Nähe des Kerns besitzen. Diese Aufenthaltswahrscheinlichkeit ist dabei abhängig von der Drehimpulsquantenzahl  $l$  und nimmt mit steigendem  $l$  ab. Zusätzlich verursacht das Rydbergelektron bei einer nahen Kernpassage Polarisierungseffekte in den inneren Schalen des Atoms. Die Theorie, die zur Beschreibung dieser Effekte verwendet wird, ist die Quantendefekttheorie [79, 81]. Diese besagt, dass das

<sup>2</sup>Für ein Wasserstoffatom ergibt sich bei einer Hauptquantenzahl  $n = 250$  ein Umlaufradius von  $3,3 \cdot 10^{-6}\text{m}$ .

Tabelle 2.1: Die wichtigsten Eigenschaften von Rydberg-Atomen in Bezug auf ihre Hauptquantenzahl  $n$  [40, 77]

Eigenschaft	Abhängigkeit zur Hauptquantenzahl $n$
Abstand benachbarter Zustände	$n^{-3}$
Bindungsenergie	$n^{-2}$
Radius der Bahn	$n^2$
Dipolmoment	$n^2$
Lebensdauer	$n^3$
Geom. Wirkungsquerschnitt	$n^4$
Polarisierbarkeit	$n^7$

Potential in Kernnähe sich vom reinen Coulombpotential unterscheidet und dementsprechend empirisch modifiziert wird. Durch Einführen des Quantendefekts zur Berücksichtigung von Polarisations- und Abschirmeffekten modifiziert man die Energiegleichung 2.14 zur Rydberg-Ritz Formel [24]

$$E_n = E_{IP} - \frac{R_M \cdot Z^2}{(n - \delta_{nlj})^2} = E_{IP} - \frac{R_M \cdot Z^2}{(n^*)^2}. \quad (2.16)$$

mit  $\delta_{nlj}$  als der Quantendefekt und  $n^* = n - \delta_{nlj}$  als die effektive Hauptquantenzahl. Der Quantendefekt kann im Rahmen der Ritz Expansion  $\delta_{nlj} = A + \frac{B}{(n-A)^2} + \frac{C}{(n-A)^4} + \dots$  mit den empirisch zu bestimmenden Konstanten A,B und C beschrieben werden und ist abhängig von der Drehimpulsquantenzahl  $l$  und der Hauptquantenzahl  $n$ . Durch die Verallgemeinerung der Energiegleichung 2.14 auf schwerere Atome mit mehreren Elektronen verlieren einige der in Tabelle 2.1 aufgelisteten Eigenschaften. Anders als im Falle des Wasserstoffatoms mit einem Elektron, bei dem alle Rydbergzustände lediglich einem Serienlimit bzw. Ionisationspotential  $E_\infty$  entgegenstreben und somit durch fundamentale Konstanten vollständig beschrieben werden können, konvergieren in Mehrelektronenatome die Rydbergserien zu ihrem jeweiligen Serienlimit, abhängig davon ob die Atome neutral oder bereits einfach bzw. mehrfach ionisiert sind. Sie können daher nicht mehr nur durch fundamentale Konstanten komplett beschrieben werden.

Auch lässt sich die Hauptquantenzahl  $n$  im Fall von Mehrelektronenatome nicht mehr einfach aus der Beziehung  $E_{n+1} - E_n \approx 1/n^3$  als der Abstand zweier benachbarter Rydbergzustände extrahieren [60].

Im Folgenden werden einfache Beispiele für das Verhalten des Quantendefekts in unterschiedlichen Rydbergserien gegeben. Betrachtet werden dabei Rydbergzustände mit kleinem und großem  $l$ .

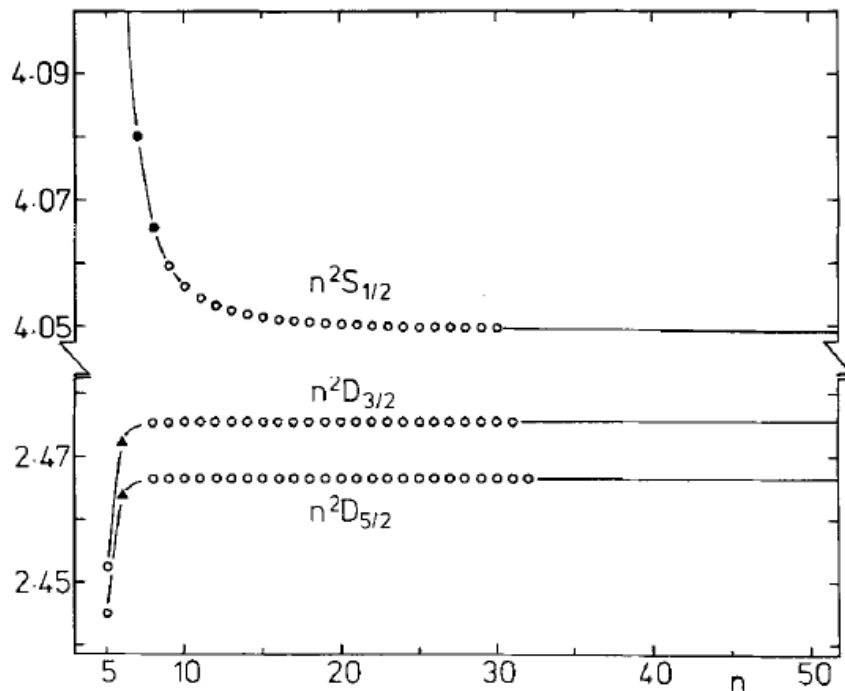


Abbildung 2.3: Quantendefekt der verschiedenen Rydbergserien gegenüber der Hauptquantenzahl  $n$  bei Cs. Gezeigt werden jeweils eine Rydberg-S Serie und eine Rydberg-D Serie. Beide Serien konvergieren bei hohen Quantenzahlen  $n$  gegen einen festen Wert. Das Bild wurde bearbeitet und entnommen aus [82]. Kopierechte bei der *American Physical Society*.

#### Nahe am Kern, $l \leq 1$

Rydbergelektronen mit  $l=0$  und  $n < 10$  haben eine nichtverschwindende Aufenthaltswahrscheinlichkeit in der Nähe des Kerns, das Elektron ist also stärker an den Kern gebunden. Der Quantendefekt ist daher für die Mitglieder der S-Serie mit niedriger Hauptquantenzahl  $n$  sehr viel grösser als für die Mitglieder mit höherem  $n$ . Mit steigender Hauptquantenzahl  $n$  konvergiert der Quantendefekt asymptotisch gegen einen Grenzwert. Dies wird sichtbar am Beispiel einer S-Serie in Cäsium I, siehe Abbildung 2.3

#### Weit vom Kern entfernt, $l > 3$

Rydbergelektronen mit einem hohen Drehimpuls, z.B. Mitglieder einer D- oder F-Serie, verhalten sich konträr zum vorher betrachteten Fall. Durch ihren hohen Drehimpuls ist die Aufenthaltswahrscheinlichkeit nahe am ionischen Rumpf sehr gering. Das elektrische Feld des Valenzelektrons polarisiert den ionischen Rumpf, und als Folge dessen ist der Quantendefekt für Mitglieder dieser Serien sehr nahe an 0 und steigt für höhere Quantenzahlen  $n$

an und konvergiert schliesslich einem festen Serienwert zu. Dies ist beispielhaft in Grafik 2.3 an der Rydberg-D-Serie in Cäsium I zu sehen.

Bei dem Auftreten mehrerer Rydberg-Serien besteht gerade in den energetisch höheren Lagen die Möglichkeit, dass diese nah aneinander lokalisiert sind und daher eine gegenseitige Beeinflussung durch Interferenz von Zuständen mit gleicher Drehimpulsquantenzahl  $J$  nicht mehr ausgeschlossen werden kann. Diese Effekte können im Rahmen der Vielkanal-Quantendefekttheorie [60, 81] beschrieben werden. Eine anschauliche Möglichkeit, um eine Störung der Rydberg-Zustände festzustellen ist die Methode von LuFano [83]. Hierfür nimmt man zwei Rydberg-Serien mit den Ionisationspotentialen  $E_{IP}(x)$  und  $E_{IP}(y)$  und ordnet jedem einzelnen Rydberg-Zustand zwei Quantendefekte  $\delta_x$  und  $\delta_y$  zu:

$$\delta_{x,y} = \sqrt{\frac{R_M}{E_{IP}(x,y) - E_n}} \quad (2.17)$$

Nach der Zuordnung zu dem jeweiligen Rydberg-Zustand trägt man diese in einem zweidimensionalen Diagramm auf. Liegt keine Wechselwirkung zwischen den Rydberg-Zuständen vor, so gruppieren diese sich entlang einer Geraden, der Quantendefekt ist also konstant. Sind jedoch Anteile von Zuständen der jeweils anderen Serie  $y$  in der betrachteten Serie  $x$  vorhanden, findet man die Punkte auf zwei Kurven vor, die sich nicht überkreuzen. Liegen Rydberg-Zustände in diesem Bereich, der von beiden Kurven eingerahmt wird, sind Beimischungen aus beiden Serien vorhanden und eine eindeutige Zuordnung und Termierung ist in diesem Fall nicht mehr möglich. Eine solche LuFano - Zuordnung ist schematisch in 2.4 zu sehen.

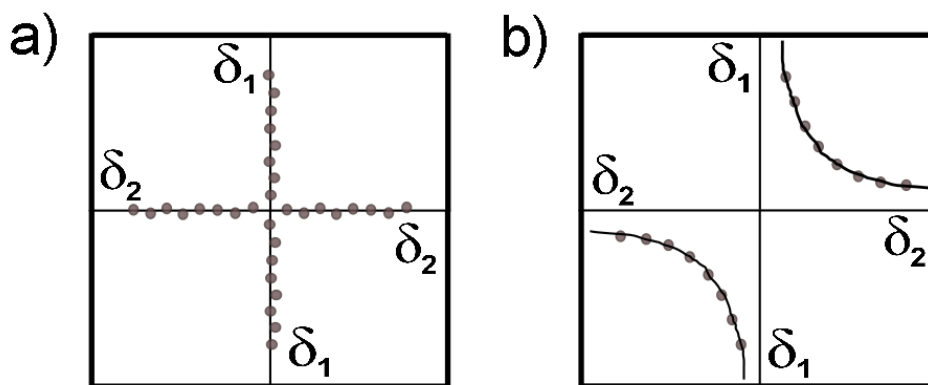


Abbildung 2.4: Aufgetragen sind die Quantendefekte zweier Serien  $\delta_1$  und  $\delta_2$  nach LuFano. Liegt keine Wechselwirkung vor, so ordnen sich die Quantendefekte einer Serie jeweils entlang einer Geraden (a). Im Falle einer gegenseitigen Beeinflussung (b) liegen die Punkte auf jeweils zwei Kurven, die sich durch die sog. vermiedene Überkreuzung auszeichnen. Liegen nun Zustände innerhalb dieses ausgezeichneten Bereichs, gelten diese als gestört.



## 2.3 Resonanzionisationsspektroskopie (RIS)

In diesem Kapitel werden aufbauend auf den atomaren Spektren die Methoden der Resonanzionisation mit Lasern erarbeitet.

### 2.3.1 Einführung in die Resonanzionisationsspektroskopie

Die Resonanzionisationsspektroskopie mit Lasern [83–86] blickt auf eine lange Tradition zurück und wurde bereits um 1980 erfolgreich angewendet [26]. Im Prinzip geht es darum, mit Hilfe von Lasern dem Atom genügend Energie hinzuzufügen, um auf diese Art und Weise ein Hüllenelektron des Atoms abzutrennen und somit das Atom zu ionisieren. Hierbei gibt es eine Vielzahl an Variationsmöglichkeiten, wie die notwendige Energie zur Ionisation des Atoms erbracht werden kann. Die verschiedenen Möglichkeiten werden schematisch in Abbildung 2.5 dargestellt. Der am einfachsten zu realisierende Ionisationsprozeß mit

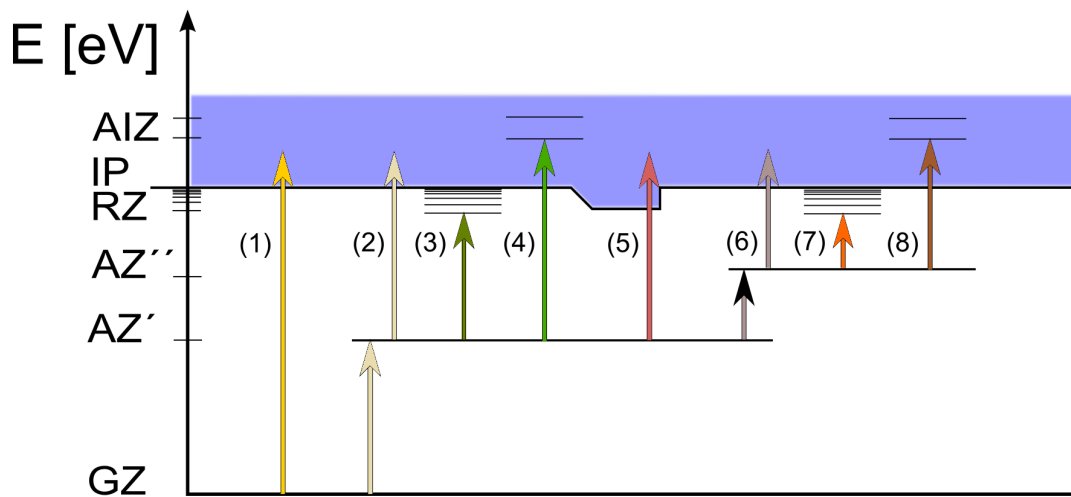


Abbildung 2.5: Schematische Darstellung einiger prominenter Anregungs- und Ionisationsbeispiele bei der Verwendung von Laserstrahlung. GZ steht für den Grundzustand, AZ für einen angeregten Zustand, RZ für einen Rydbergzustand, AIZ für einen autoionisierenden Zustand und IP ist die Abkürzung für das Ionisationspotential. Eine Beschreibung der einzelnen Prozesse (1) - (8) findet sich im Text.

Laserstrahlung ist dabei die Absorption eines einzelnen hochenergetischen Photons (Abbildung 2.5(1)). Bedingung hierfür ist, dass die Energie des eingestrahlten Photons über dem Ionisationspotential (IP) liegt. Diese Methode ist allerdings nicht elementselektiv, da alle Elemente mit einem kleineren Ionisationspotential als die Energie des Photons ionisiert werden. Die Abbildungen 2.5(2)-(5) sind Variationen eines zweistufigen Anregungs-bzw. Ionisationsprozess. Hierbei handelt es sich um eine nichtresonante Photoionisation (2), die resonante Anregung in Rydbergzustände mit nachfolgender Stoßionisation (3), die reso-

nante Anregung in autoionisierende Zustände (4) und die nichtresonante Ionisation mit Anlegen eines äusseren elektrischen Feldes (5). Das zweistufige Anregungsschema lässt sich durch zusätzliche resonante Zwischenschritte erweitern, wie in (6)-(8) gezeigt. Die Ionisation erfolgt dabei analog wie im Fall eines zweistufigen Anregungsschema. Eine umfassende Erläuterung der einzelnen Anregungs- und Ionisationsformen findet sich in [85, 86]. Für diese Arbeit sind die Anregungs- bzw. Ionisationsformen aus Abbildung 2.5 (2) und (3) von Relevanz, sodass im Folgenden lediglich diese beiden Prozesse beschrieben werden. Beide Arten der Laserinteraktion mit den Zielatomen sind in Abbildung 2.6 mit der expliziten Angabe des Wirkungsquerschnitts dargestellt.

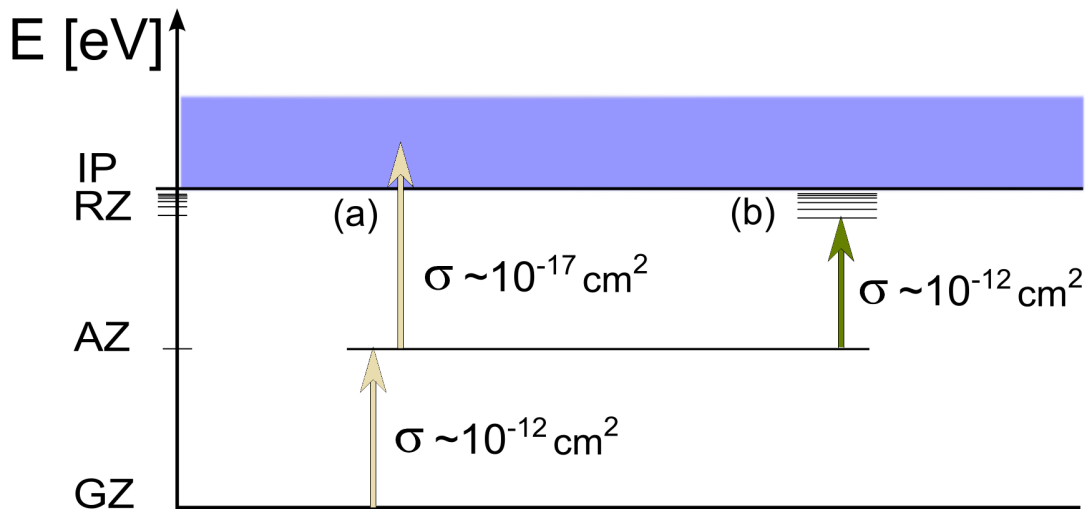


Abbildung 2.6: Dargestellt ist jeweils ein zweistufiger Laserwechselwirkungsprozess mit dem Atom, zum Einen ein nichtresonanter Photoionisationsprozess auf der Suche nach einem intermediären Niveau (AZ) in (a) und ein zweifach resonanter Anregungsprozess mit anschliessender Stoßionisation zur Identifikation hochliegender Rydbergzustände (RZ) in (2). (GZ) steht hierbei für den Grundzustand und (IP) für das Ionisationspotential. Zusätzlich sind die typischen Wirkungsquerschnitte der Anregungs- bzw. Ionisationsform angegeben.

### 1. Nichtresonante Ionisation - Photoionisation

Die sog. Photoionisation, siehe Abbildung 2.6.(a), erlaubt die Suche nach einem intermediären Zwischenniveau bei gleichzeitigem Festhalten der zweiten Anregungswellenzahl  $\tilde{\nu}_2$ . Üblicherweise greift man auf diesen nichtresonanten Ionisationsprozess zurück, sofern es keine experimentell verfügbaren Daten zu der atomaren Struktur des Elements gibt. Bei der Photoionisation startet man mit der Anregung eines Valenzelektrons aus dem Grundzustand oder einem thermisch besetzten Niveau  $|i\rangle$  in ein angeregtes Niveau  $|k\rangle$  mit der

spezifischen Anregungswellenzahl  $\bar{\nu}_1$  und seiner Lebensdauer  $\tau_k = 1/A_{ki}$ , wobei  $A_{ki}$  der Einstein-Koeffizient der spontanen Emission dieses Zustands ist. Bei dieser Anregung muss beachtet werden, dass lediglich Übergänge angeregt werden können, bei denen die Auswahlregeln ( $\Delta J = 0, \pm 1$  handelt, wobei  $J = 0 \rightarrow J = 0$  verboten ist) erfüllt werden und somit optische Dipolübergänge sind. Bei dem zweiten Schritt handelt es sich um eine Anregung mit einem Laserpuls der Anregungswellenzahl  $\bar{\nu}_2$ , der das angeregte Elektron über das Ionisationspotential hinaus ins Kontinuum anregt und es so von dem verbleibenden einfach geladenen Ion trennt. Dabei muss die Gesamtenergie der Photonen die zur Ionisation benötigte Energieschwelle überschreiten

$$E_{\bar{\nu}_1} + E_{\bar{\nu}_2} > E_{\text{IP}}. \quad (2.18)$$

Der Wirkungsquerschnitt der nichtresonanten Ionisation  $\sigma_2$  kann ebenfalls über die Annahme eines Zwei-Niveau Systems extrahiert werden mit

$$\dot{N}(\Psi_2) = \dot{N}_0 \cdot (1 - e^{-\sigma_2 \cdot \Psi_2}) \quad (2.19)$$

Übliche Wirkungsquerschnitte für die nicht resonante Ionisation werden in der Literatur mit  $10^{-16} \text{ cm}^2$  bis  $10^{-18} \text{ cm}^2$  angegeben [84, 87].

Die Ionisationsrate  $\gamma_{\text{Ion}}$  ist direkt abhängig von dem Wirkungsquerschnitt  $\sigma_2$  und von dem Photonenfluss  $\Psi_2$  des Lasers mit

$$\gamma_{\text{Ion}} = \sigma_{\text{Ion}} \Psi_{\text{Ion}}. \quad (2.20)$$

In Konkurrenz zu der Ionisation steht die begrenzte Lebensdauer des angeregten Zustands, die typischerweise im Bereich zwischen wenigen ns bis zu einigen Sekunden liegen kann. Damit eine effiziente Ionisation sichergestellt werden kann, müssen Ionisationsraten bei kurzlebigen angeregten Zuständen im Bereich von  $10^8/\text{s}$  erreicht werden. Mit Gleichung 2.20 errechnet sich somit bei einer Einstrahlfläche von  $1 \text{ cm}^2$  einen benötigten Photonenfluss von  $\Psi_{\text{Ion}} \approx 10^{24} - 10^{26} \frac{1}{\text{s}}$ . Bei einer Pulsdauer von 20 ns entspricht dies einem Photonenfluss von  $\Psi_{\text{Ion}} \approx 5 \cdot 10^{15} - 10^{17} \frac{1}{\text{Puls}}$ .

## 2. Rydberg-Anregung

Bei der Rydberg-Anregung wird das Valenzelektron auf eine weite Umlaufbahn um den ionischen Atomrumpf gebracht (vgl. Kapitel 2.2.4). Es handelt sich also hierbei um eine Anregung eines Elektrons aus der Schale in einen Zustand mit hoher Hauptquantenzahl  $n$ , wie in Abbildung 2.6b) dargestellt ist. Zur Ionisation dieser hochangeregten Zustände, welche sich bereits nahe des Ionisationspotentials befinden und somit schwach an den Kern gebunden sind, können durch verschiedene Prozesse effizient ionisiert werden. Hierzu zählen unter anderem die nichtresonante Photoionisation, bei der man einen weiteren nichtresonanten Laser einstrahlt, Stöße mit den Atomen des Puffergas oder aber durch Anlegen eines elektrischen Felds. Innerhalb dieser wird zur Ionisation der hochliegenden Rydbergzustände kein weiterer Laser eingestrahlt und die verwendeten elektrischen Feldstärken mit wenigen V/cm am Ort der Laserinteraktion reichen zur effizienten Feldionisation von Rydberg-

zuständen mit  $n < 50$  bei weitem nicht aus. Als Ionisationskanäle stehen also lediglich die Absorption von Infrarotphotonen und der Energieübertrag durch Stöße mit den Atomen des Puffergas zur Verfügung. Die Energie, die dabei bei Gasstößen übertragen werden kann, ist ausreichend, um Rydbergzustände in einem Abstand von  $\approx 500 \text{ cm}^{-1}$  zum Ionisationspotential zu ionisieren. Bei einem Ar-Puffergasdruck von 100 mbar beträgt die mittlere freie Weglänge  $\approx 6,4 \cdot 10^{-7} \text{ m}$  [88], sodass es im Rahmen der durchschnittlichen Lebensdauer von Rydbergzuständen zur erfolgreichen Ionisation kommen kann. Hierbei ist die Lebensdauer von hochliegenden Rydbergzuständen ( $n > 20$ ) höher als die von Rydbergzuständen mit kleinerem  $n$  und kann durchaus bis zu einigen  $\mu\text{s}$  betragen.

Da es sich bei Rydberganregungen um resonante Prozesse handelt, benötigt man moderate Laserpulsenergie zum Sättigen des Niveaus. Typischerweise liegen die Wirkungsquerschnitte im Bereich von  $10^{-10} - 10^{-13} \text{ cm}^2$  [85], also verglichen zur nichtresonanten Ionisation um einen Faktor  $10^4 - 10^8$  höher. Um diesen Prozess zur effizienten Ionisation nutzen zu können, muss jedoch die Lage dieser Zustände bekannt sein. Umgekehrt lassen sich, nachdem ein erster angeregter Zustand identifiziert worden ist, gezielt Rydbergzustände suchen, wie in Abbildung 2.6b) dargestellt. Identifiziert man einige dieser Zustände lässt sich mit Hilfe der in 2.16 beschriebenen Rydberg-Ritz-Formel das Ionisationspotential präzise bestimmen.

### 2.3.2 Niveau-Anregungen mit Laserlicht

Spektroskopische Untersuchungen der Atomhülle lassen sich mit monochromatischem Laserlicht durchführen. Dabei werden optische Übergänge innerhalb der Atomhülle ausgenutzt, um die Anregungsenergie in multiplen Schritten zu erhöhen und damit ein Valenzelektron auf eine grössere Umlaufbahn um den Atomkern zu bringen. Wird im Verlauf des Prozesses die Energie über das Ionisationspotential erhöht, wird das Valenzelektron vom ionischen Rumpf getrennt (Gleichung 2.18). Dieses Verfahren ist aufgrund der elementspezifischen Verschiedenheit der Niveaustrukturen der Atomhülle hochselektiv. Die Beschreibung der theoretischen Zusammenhänge werden hier zusammenfassend dargestellt und weitere Details finden sich z.B. in [87].

Als einfachsten Ansatz für die Interaktion eines Atoms mit einer elektromagnetischen Welle beachtet man die zeitabhängige Schrödingergleichung für ein Zwei-Niveau-System, wie es schematisch in Abbildung 2.7 mit dem ersten Zustand  $|i\rangle$  und einem höherliegenden Zustand  $|k\rangle$  gezeigt wird. Die Schrödingergleichung [89–91] lautet hierbei

$$i\hbar \cdot \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(t)\rangle = \hat{H} |\Psi(t)\rangle \quad (2.21)$$

mit  $\hat{H}$  als der Hamiltonoperator, der sich zusammensetzt aus einem ungestörten Teil  $\hat{H}_0$  und dem Operator  $\hat{V}(t)$ , der die Interaktion zwischen dem Atom und der elektromagnetischen Lichtwelle beschreibt. Da die Wellenlänge des mit dem Systems interagierenden Lichts viel grösser ist als die räumliche Ausdehnung des Systems, also  $\lambda_W \gg r_{\text{Atom}}$ , spielt nur das zeit-

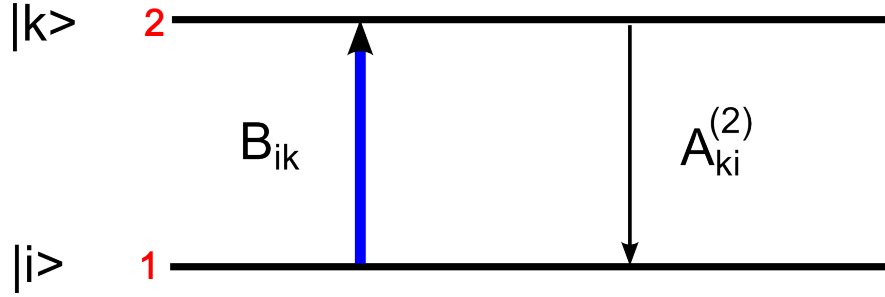


Abbildung 2.7: Schema eines Zwei-Niveau-Systems. Hierbei steht  $B_{ik}$  für die stimulierte Absorption und  $A_{ki}$  für die spontane Emission.  $|i\rangle$  ist hier der Grundzustand und  $|k\rangle$  der angeregte Zustand.

liche Verhalten am Ort des Atoms eine wesentliche Rolle. Diese Näherung wird auch als Dipolnäherung bezeichnet. Der Potentialoperator lässt sich somit angeben mit [49]

$$\bar{V}(t) = -\vec{\mu} \cdot \vec{E}(t). \quad (2.22)$$

$\vec{E}(t)$  beschreibt das zeitabhängige Potential der elektromagnetischen Lichtwelle und  $\vec{\mu}$  ist der elektrische Dipolmoment Operator des Systems. Ein Ansatz zur Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung 2.21 ist gegeben durch [87]

$$\Psi = a_i(t) \cdot \Psi_i e^{\frac{-iE_i t}{\hbar}} + a_k(t) \cdot \Psi_k e^{\frac{-iE_k t}{\hbar}}. \quad (2.23)$$

Bei  $a_{i,k}(t)$  handelt es sich um die Wahrscheinlichkeitsamplituden, das System im Zustand  $|i\rangle$  bzw.  $|k\rangle$  zu finden und  $\Psi_{i,k}$  sind die Wellenfunktionen der stationären Energiezustände des Systems. Setzt man Gleichung 2.23 in die zeitabhängige Schrödingergleichung ein, erhält man einen Satz von Differentialgleichungen, welche die zeitliche Propagation der Wahrscheinlichkeitsamplituden  $a_{i,k}(t)$  beschreiben [87]

$$\begin{aligned} i\hbar \dot{a}_i(t) &= V_{ki} a_k e^{-i\omega_{res} t} \\ i\hbar \dot{a}_k(t) &= V_{ik} a_i e^{+i\omega_{res} t}. \end{aligned} \quad (2.24)$$

Hier beschreibt  $\omega_{res} = (E_k - E_i)/\hbar$  die Resonanzfrequenz des optischen Übergangs und  $V_{ik}$  bzw.  $V_{ki}$  die Matrixelemente des Operators  $\bar{V}(t)$ . Durch die Verwendung einer linear polarisierten Lichtwelle  $\vec{E}(t) = \vec{e} E_0 \cdot \cos(\omega t)$  mit der Frequenz  $\omega$  und der Amplitude  $E_0$  der Lichtwelle lassen sich die Matrixelemente des Operators zu  $V_{ik} = -\mu_{ik} \cdot E_0 \cos(\omega t)$  [87] darstellen.  $\mu_{ik} = \vec{\mu} \vec{e}$  ist hierbei die Projektion des Erwartungswerts des Dipoloperators auf den Polarisationsvektor  $\vec{e}$  der Lichtwelle.

Zur weiteren Vereinfachung verwendet man die **rotating wave approximation** [92], wel-

che voraussetzt, dass sich die Frequenz der Lichtwelle nicht wesentlich von der Resonanzfrequenz des Systems unterscheidet, sodass die Differenzfrequenz  $\chi$  die Bedingung

$$|\chi| = |\omega - \omega_{res}| \ll \omega_{res}, \omega$$

erfüllt. Unter Berücksichtigung eines schwachen Feldes können die schnell oszillierenden Terme vernachlässigt werden und die Differentialgleichung 2.24 vereinfachen sich dann zu [87]

$$\begin{aligned} i\hbar\dot{a}_i(t) &= -1/2\mu \cdot E_0 a_k e^{+i\chi \cdot t} \\ i\hbar\dot{a}_k(t) &= -1/2\mu \cdot E_0 a_i e^{-i\chi \cdot t}. \end{aligned} \quad (2.25)$$

Zum Zeitpunkt  $t=0$  befindet sich das System im Zustand  $|i\rangle$ , sodass die Besetzungswahrscheinlichkeit der Zustände mit  $|a_i(t=0)|^2 = 1$  und  $|a_k(t=0)|^2 = 0$  gegeben sind. Hiermit lässt sich das Differentialgleichungssystem 2.25 lösen zu [87]

$$\begin{aligned} a_i(t) &= \left( \cos\left(\frac{\Omega \cdot t}{2}\right) - i(\chi/\Omega) \cdot \sin\left(\frac{\Omega \cdot t}{2}\right) \right) \cdot e^{+(i\chi t)/2} \\ a_k(t) &= i \left( \frac{\mu \cdot E_0}{\hbar \cdot \Omega} \right) \cdot \sin\left(\frac{\Omega \cdot t}{2}\right) \cdot e^{-(i\chi t)/2}. \end{aligned} \quad (2.26)$$

Hierbei ist  $\Omega = \sqrt{(\chi)^2 + (\frac{\mu \cdot E_0}{\hbar})^2}$  [87] die Rabi-Frequenz des Systems. Im Falle, dass die interagierende Lichtwelle mit der exakten Resonanzfrequenz auf das System trifft, gilt  $\Omega_0 = \mu \cdot E_0 / \hbar$  und die Besetzungswahrscheinlichkeit für das System, sich im Zustand  $|k\rangle$  zu befinden, ergibt sich aus Gleichung 2.26 zu [87]

$$|a_k(t)|^2 = \sin^2\left(\frac{\Omega \cdot t}{2}\right)$$

Somit oszilliert die Besetzungswahrscheinlichkeit des angeregten Zustands  $|k\rangle$  sinusförmig mit der Rabi-Frequenz  $\Omega$  zwischen 0 und 1. Hierbei handelt es sich insgesamt um eine ideale, theoretische Betrachtung einer resonanten Anregung, welche insbesondere den spontanen Zerfall aus dem oberen Zustand nicht berücksichtigt.

In realen Systemen beeinflussen statistische, inkohärente Prozesse wie der spontane Zerfall aus dem angeregten Zustand  $|k\rangle$  in den Grundzustand  $|i\rangle$  mit der Lebensdauer  $t_{ki}$ , auch longitudinale Relaxation genannt, oder sog. dephasierende Stöße, also Interaktionen des Systems mit der Umgebung, mit der Zeit  $t_2$  als transversale Relaxation bezeichnet, den Zustand des betrachteten Systems. Dabei können die Interaktionen des Systems mit der Umgebung die Population des angeregten Zustands  $|k\rangle$  beeinflussen und eine Verbreiterung der spektralen Linie vom Übergang  $|i\rangle \rightarrow |k\rangle$ , verursachen [93], die in der Lorentzform der Resonanz mit  $\Gamma_{hom} = 1/t_2$  berücksichtigt wird [87]. Mit der Schrödingergleichung 2.21 können statistische Prozesse jedoch nicht beschrieben werden.

## Dichtmatrixformalismus

Der Dichtmatrixformalismus erlaubt die Beschreibung der Anregung eines Systems mit einer Lichtwelle unter Berücksichtigung statistischer Prozesse. Betrachtet wird dabei nicht nur der zeitliche Verlauf der einzelnen Wahrscheinlichkeitsamplituden  $a_{x,y}(t)$ , sondern ebenfalls deren gemittelten Kombinationen als Matricelement der Dichtematrix [49, 80], so dass allgemein gilt

$$\rho_{xy}(t) = \langle a_y^*(t) a_x(t) \rangle . \quad (2.27)$$

In dem Fall unseres Zwei-Niveau-Systems aus Abbildung 2.7 mit den Zuständen  $|i\rangle$  und  $|k\rangle$  entsprechen die Diagonalelemente der Dichtematrix den Populationswahrscheinlichkeiten des Zustands  $|i\rangle$  oder  $|k\rangle$  [87]

$$\begin{aligned} n_i(t) &= \rho_{ii}(t) = \langle a_i^*(t) a_i(t) \rangle \\ n_k(t) &= \rho_{kk}(t) = \langle a_k^*(t) a_k(t) \rangle . \end{aligned} \quad (2.28)$$

Die zeitliche Propagation der Zustandspopulation lässt sich dann mit dem Differentialgleichungssystem unter der Berücksichtigung des spontanen Zerfalls mit der Zeit  $t_{ki}$  [87]

$$\begin{aligned} \dot{n}_i(t) &= (i/\hbar) \cdot \vec{E}(\vec{\mu}_{ik} \cdot \rho_{ik} - \vec{\mu}_{ki} \cdot \rho_{ki}) - (1/t_{ki})(n_i - n_i^0) \\ \dot{n}_k(t) &= -(i/\hbar) \cdot \vec{E}(\vec{\mu}_{ik} \cdot \rho_{ik} - \vec{\mu}_{ki} \cdot \rho_{ki}) - (1/t_{ki})(n_k - n_k^0) \end{aligned} \quad (2.29)$$

beschreiben.  $n_{i,k}^0$  steht für die Populationswahrscheinlichkeiten des Grundzustands  $|i\rangle$  und angeregten Zustands  $|k\rangle$  in Abwesenheit äusserer Einflüsse im stationären Zustand. Die Änderung der Zustandspopulation hängt von den Nicht-Diagonal-Matricelementen der Dichtematrix  $\rho_{ik}$  und  $\rho_{ki}$  ab, die das hochfrequente, durch die elektromagnetische Lichtwelle induzierte Dipolmoment  $\vec{P}(t)$  des Zwei-Niveau-System beschreiben mit [87]

$$\vec{P}(t) = \vec{\mu}_{ik} \rho_{ik} + \vec{\mu}_{ki} \rho_{ki} .$$

Den zeitlichen Verlauf der Nicht-Diagonal-Matricelemente  $\rho_{ik}$  und  $\rho_{ki}$  lässt sich ebenfalls durch ein Differentialgleichungssystem der Form [87]

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{ik}(t) &= i\omega_{res} \rho_{ik} + (i/\hbar) \cdot \vec{E} \vec{\mu}_{ik} (n_k - n_i) - (1/t_2) \rho_{ik} \\ \dot{\rho}_{ki}(t) &= -i\omega_{res} \rho_{ki} - (i/\hbar) \cdot \vec{E} \vec{\mu}_{ki} (n_k - n_i) - (1/t_2) \rho_{ki} \end{aligned} \quad (2.30)$$

nach Mittelung und mit Berücksichtigung der transversalen Relaxation mit der Zeitkonstanten  $t_2$  darstellen.

Zur Vereinfachung der Gleichungen 2.29 und 2.30 kann die Differenz der zeitlichen Zustandspopulationen mit  $N_t = n_k(t) - n_i(t)$  [87] mit der Bedingung der Erhaltung der Gesamtpopulation  $n_i + n_k = 1$  [87] dargestellt werden. Mit der Anwendung der **rotating wave**

**approximation**<sup>3</sup>, der Einstrahlung der Lichtwelle  $E(t) = E_0 \cdot \cos(\omega_{res} t)$  [49] in Resonanz mit dem System und unter Berücksichtigung von  $\vec{P}(t) = \vec{e} \cdot P(t) \cos(\Omega t + \phi(t))$  erhält man [87]

$$\begin{aligned} \dot{N} + (1/t_{ki})(N - N_0) &= -(1/\hbar)P \cdot E_0 \sin \phi \\ \dot{P} + (1/t_2)P &= (\mu^2/\hbar)N \cdot E_0 \sin \phi \\ (\Omega - \omega_{res}) \cdot P &= (\mu^2/\hbar)N \cdot E_0 \cos \phi \end{aligned} \quad (2.31)$$

Mit der sog. inkohärenten Interaktionsnäherung [87], d.h. im Fall einer schwachen Stärke der Lichtwelle mit  $2\Omega_0 \ll 1/t_2$  kann das Dipolmoment mit der Amplitude des Lichtwelle dargestellt werden zu [87]

$$P = (\mu^2 t_2 / \hbar) N \cdot E_0 \sin \phi. \quad (2.32)$$

Das Differentialgleichungssystem 2.31 kann dann in die vereinfachte Ratengleichung [87]

$$\dot{N} + (1/t_{ki})(N - N_0) = -2\sigma_\Omega \cdot I \cdot N \quad (2.33)$$

mit

$$\sigma_\Omega = (4\pi\omega_{res} \cdot \mu^2 \cdot t_2 / c\hbar) \cdot L \left( \frac{\Omega - \omega_0}{\Gamma_{hom}} \right)$$

[87] als der optische Wirkungsquerschnitt, abhängig von der eingestrahnten Frequenz des Lichts,  $I = (c \cdot E_0^2) / (8\pi \cdot \hbar \Omega)$  [87] die Strahlungsintensität der Lichtwelle überführt werden und  $L$  der Lorentzbreite. Aus Gleichung 2.33 lassen sich zwei Grenzfälle zur Niveauanregung mit Laserlicht herleiten. Im ersten Fall [87] soll die Pulsdauer der Lichtwelle bzw. des Lasers  $t_{Laser}$  sehr viel grösser als die Depopulationszeit  $t_{ki}$  des Zustands  $|k\rangle$  sein

$$t_{Laser} \gg t_{ki}$$

sodass während der Interaktion mit dem Laserpuls optisches Pumpen eine Rolle spielt, also mehrere Zerfälle in den Zustand  $|i\rangle$  und erneute Anregung nach  $|k\rangle$  auftreten kann. Als Näherung kann Gleichung 2.33 dann im stationären Zustand  $\dot{N}_i = 0$  angenommen werden und die Lösung der Ratengleichung erfolgt mit [87]

$$N(t) = N_0 \cdot (1 + I(t)/I_s)^{-1}. \quad (2.34)$$

$I_s$  ist hierbei als die Absorptionssättigungsintensität in Abhängigkeit des optischen Wirkungsquerschnitts  $\sigma_{\omega-opt}$  definiert [87]:

$$I_s = \frac{1}{2 \cdot \sigma_{\Omega-opt} \cdot t_{ki}}. \quad (2.35)$$

Im zweiten Fall [87] ist die Pulsdauer des Lasers  $t_{Laser}$  sehr viel kleiner als die Depopulationszeit  $t_{ki}$  des Zustands  $|k\rangle$

$$t_{Laser} \ll t_{ki}$$

<sup>3</sup>Die Erklärung zur rotating wave approximation und die Definition von  $\Omega$  finden sich in Abschnitt 2.3.2



In diesem Fall kann die Depopulationszeit  $t_{ki}$  vernachlässigt werden und Gleichung 2.33 vereinfacht sich zu

$$\dot{N} + 2\sigma_{\Omega} \cdot I \cdot N = 0. \quad (2.36)$$

Ein Ansatz zur Lösung der Differentialgleichung 2.36 ist eine Exponentialfunktion der Gestalt [87]

$$\frac{\dot{N}(\Psi_1)}{N_0} = 1 - e^{-\sigma_{\Omega-exp} \cdot \Psi_1}. \quad (2.37)$$

Freie Parameter des Modells sind hierbei der optische Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{\omega-exp}$ , der in Abhängigkeit der Photonenflussdichte  $\Psi(t) = -\int_{-\infty}^t I(t')dt'$  bestimmt wird [87].

Aus den Messungen des optischen Wirkungsquerschnitts  $\sigma_{\omega}$  lassen sich unter der notwendigen Annahme, dass die Bandbreite des Lasers  $\delta \bar{\nu}_1$  viel grösser als die Linienbreite des Zustands ist die Einstein-Koeffizienten  $A_{ki}$  unter der Annahme eines Zwei-Niveau-Systems mit dem aus [94] entnommenen Zusammenhang bestimmen:

$$A_{ki} = \frac{8 \cdot \pi \cdot \delta \bar{\nu}_1}{(\lambda_1)^2} \cdot \sigma_{\Omega} \quad (2.38)$$

Hierbei ist  $\delta \bar{\nu}_1$  die Halbwertsbreite des Anregungslasers bei einer diskreten Wellenlänge  $\lambda_1$ , die mit Hilfe eines Monitor-etavons für den Farbstoff PTP zu  $5,5 \pm 0,5$  GHz bestimmt wurde. Als fehlerbehaftete Grössen bei der Bestimmung der Einstein-Koeffizienten  $A_{ki}$  für spontane Emission wurden die Parameter  $\Delta \delta \bar{\nu}_1$  als Fehler bei der Bestimmung der Laserbandbreite  $\delta \bar{\nu}_1$ ,  $\Delta \lambda_1$  als Ausleseungenauigkeit des Wellenzahlmeters und  $\Delta \sigma_1$  als Unsicherheit der grafischen Anpassungsfunktion an die Datenwerte gefunden. Der Fehler der Gleichung 2.38 erhält man durch die Anwendung des Gausschen Fehlerfortpflanzungsgesetzes.

Der Nachteil der hier verwendeten Annahmen ist die Vernachlässigung der Verbreiterung durch die Laserpulsenergie. Desweiteren werden jegliche andere Verlustkanäle durch Relaxation oder Stoßdämpfung im Gas in andere Zustände nicht berücksichtigt. Diese können nur ausreichend in einem multiplen Niveau-System berücksichtigt werden, für welches das entsprechende Differentialgleichungssystem numerisch zu lösen ist.

## 2.4 Theoretische Vorhersagen des atomaren Übergangs für das Element Nobelium

Für Nobelium sind sowohl MCDF - Berechnungen [4, 6, 7], als auch theoretische Vorhersagen basierend auf den gängigen RCC-Modellen (IHRCC, CIM-all-order single-double RCC) [5, 8] vorhanden. Diese werden in dem folgenden Kapitel einzeln aufgeschlüsselt und verglichen. Das erste experimentelle Ziel ist die Lokalisierung des optischen Grundzustandsübergang  $[Rn]5f^{14} 7s^2 {}^1S_0 \rightarrow [Rn]5f^{14} 7s 7p {}^1P_1$ . Die theoretischen Vorhersagen des Singlett-P-Zustands sind in Abbildung 2.8 mit der vorausgesagten energetischen Position des Ionisationspotentials dargestellt.

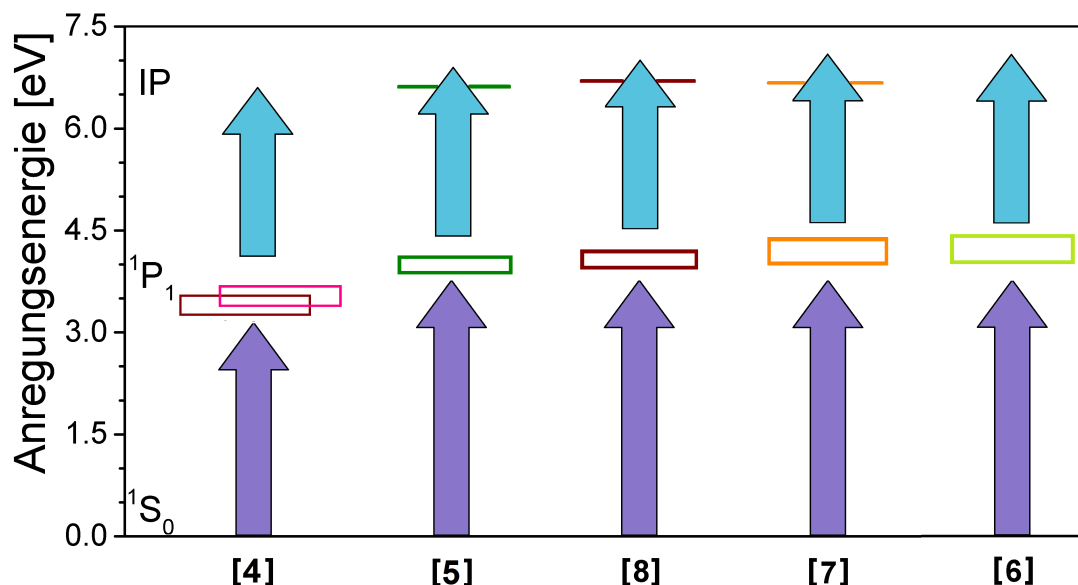


Abbildung 2.8: Aufgetragen ist ein möglicher zweistufiger nichtresonanter Ionisationsprozess für die Suche nach dem optischen  $1S_0 - 1P_1$ -Übergang bei verschiedenen theoretische Vorhersagen, sowie die Angaben des jeweiligen theoretischen Modells zur Lage des Ionisationspotentials. Die Ausdehnung der Balken markieren dabei die Unsicherheiten in der Position des optischen  $1S_0$ - $1P_1$ -Übergangs. Im Fall der MCDF-Rechnungen [4, 6, 7] liegen diese bei  $\pm 800 - 1200 \text{ cm}^{-1}$  und für die CC-Rechnungen [5, 8] werden zwischen  $\pm 600 - 800 \text{ cm}^{-1}$  angegeben. Bei dem jeweiligen lila Pfeil handelt es sich um den ersten Anregungsschritt und der türkise Pfeil markiert den zweiten, nichtresonanten Ionisationsschritt bei einer Wellenzahl von  $28490 \text{ cm}^{-1}$ .

### 2.4.1 Atomarer Übergang

Nobelium hat in seinem Grundzustand seine 2 Valenzelektronen im Zustand  $7s^2$ , die zu einer  $1S_0$  Grundzustandskonfiguration koppeln, die nächstniedrigere  $5f$ -Schale ist mit 14 Elektronen gefüllt. Für die theoretischen Berechnungen müssen bei dieser einfachen Grundzustandskonfiguration Beimischungen aus benachbarten Schalen berücksichtigt werden. Dies liegt daran, dass die äußersten Schalen der schwersten Elemente energetisch sehr nah beieinander liegen. Daher kann eine Beeinflussung untereinander nicht ausgeschlossen werden. Für die Berechnung der Energieniveaus in Nobelium durch Borschevsky et al. wurden  $37s$ ,  $31p$ ,  $26d$ ,  $21f$ ,  $16g$ ,  $11h$  und  $6i$ -Schalen als Beitragsspende berücksichtigt [5]. Die Hauptursachen für die Unsicherheiten der theoretischen Modellvorhersagen wurden bereits in Abschnitt 2.2.3 betrachtet. Der stärkste von den theoretischen

Modellen vorhergesagte optische Übergang aus dem Grundzustand führt konsistent zu einem  $^1P_1$ -Zustand. Vergleicht man die Genauigkeiten der einzelnen theoretischen Vorhersagen zu der Linienlage dieses Übergangs, so liegen die Unsicherheiten im besten Falle im Rahmen von einigen  $100 \text{ cm}^{-1}$ . Nimmt man die RCC-Rechnungen von Dzuba und Borschevsky [5, 8] und die MDFC-Rechnungen von Liu und Indelicato [6, 7] und vergleicht sie untereinander, dann überlappen alle Vorhersagen innerhalb ihres Fehlerbalkens und die Position wird bei etwas über  $30000 \text{ cm}^{-1}$  gesehen. Die MCDF-Rechnungen von Fritzsche überlappen nicht mit den restlichen Vorhersagen und liegen insgesamt mit einer Lücke von  $\Delta E_{\text{Fritzsche1-Indelicato}}(\text{sp}) = 0,44 \text{ eV}$  bzw. einem Anregungsfrequenzunterschied von  $\Delta \bar{\nu}_{\text{Fritzsche1-Indelicato}}(\text{sp}) \approx 3550 \text{ cm}^{-1}$  entfernt, wie in Abbildung 2.8 gezeigt. Da man jedoch keine Modellwerte ausschliessen kann, ergibt sich ein optisch zu scannender Bereich von  $\Delta \nu_1(\text{scan}) = 5500 \text{ cm}^{-1}$ . Dies ist erforderlich, um den durch alle theoretischen Modelle eingegrenzten Bereich innerhalb deren vorgegebenen Genauigkeit durchzufahren. Abschliessend gesehen führt dieser doch große Scanbereich zu veritablen Problemen in der Umsetzung der Suche nach dem Singlett-P Zustand. Anhand eines einfachen Beispiels wird das Problem verdeutlicht. Die spektrale Bandbreite des Farbstoffs PTP im tiefen UV-Bereich liegt im Bereich von 5,5 GHz, korrespondierend zu  $\Delta \bar{\nu}_1(\text{FWHM}) = 0,183 \text{ cm}^{-1}$ . Die reine Scanzeit ergibt sich aus der Messzeit bei einer Wellenzahl von typischerweise 50 s dem Gesamtscanbereich von  $5500 \text{ cm}^{-1}$  und Bandbreite von  $0,18 \text{ cm}^{-1}$  zu

$$t_{\text{scan}} = 50 \text{ s} \cdot \frac{5500 \text{ cm}^{-1}}{0,183 \text{ cm}^{-1}} \approx 1.503.000 \text{ s} \quad (2.39)$$

Diese Scanzeit entspricht bei einem Scanlaser etwa 417 h. Etwaige Unterbrechungen wie Farbstoffwechsel, das Wechseln der Pumplaserfüllung, Zeitverluste durch Targetradwechsel oder Instabilitäten in der Stärke des Strahlstroms sind hierbei nicht berücksichtigt. Die Netto-Scanzeit lässt sich reduzieren durch die Nutzung multipler, gleichzeitig scannender Farbstoff-Laser. Dieser Ansatz wurde auch innerhalb dieser Arbeit genutzt und eine genaue Beschreibung findet sich in Kapitel 3.3.

## 2.4.2 Ionisationspotential

Ein weiterer wichtiger Aspekt ist die energetische Lage des Ionisationspotentials. Die theoretischen Vorhersagen sind dabei bis auf die semi-empirische Angabe von Sugar et al. mit  $E_{IP} = 6,645 \text{ eV}$  [69] in Abbildung 2.8 zusammengefasst. Die ungefähre Kenntnis des Ionisationspotentials ist wichtig im Hinblick der notwendigen Bedingung, die sich aus der Methode der Photoionisation aus 2.18 ergibt, so dass die Kombination aus dem ersten Anregungsschritt  $\bar{\nu}_1$  plus Ionisationsschritt  $\bar{\nu}_2$  das Valenzelektron in jedem Fall hinter das Ionisationspotential bringen muss.

Nach einem erfolgreichen Fund des Singlett-P Zustands lässt sich aus der Wellenzahl des ersten Anregungsschritts und der Position des Ionisationspotentials der abzuscannende Bereich  $\Delta \nu_{2R}$  zur Suche nach hochangeregten Rydbergzuständen eingrenzen. Hierbei sollte das Ziel sein, möglichst nahe im Bereich der vermuteten energetischen Lage des ersten Io-

nisationspotential anzufangen, da die Dichte der Rydbergzustände aufgrund der inversen quadratischen Abhängigkeit zur Hauptquantenzahl  $n$  (vgl. Kapitel 2.3.1) mit Annäherung an das Ionisationspotential zunimmt. Sobald drei Rydbergzustände gefunden worden sind, kann man die Lage der weiteren Rydbergzustände extrapolieren.

Ebenfalls lässt sich die Zeit die zur Suche eines Rydbergzustands nötig ist, abschätzen. Geht man davon aus in einem Bereich von  $\Delta \nu_2 = 100 \text{ cm}^{-1}$  einen solchen Zustand aufzufinden, so beträgt die notwendige Scanzeit mit einer Laserschrittweite von  $0,5 \text{ cm}^{-1}$  und einer Zykluszeit von 200 s, um eine ausreichende Anzahl an  $^{254}\text{No}$  - Zerfällen auf dem Detektor zu registrieren

$$t_{\text{Ryd-mess}} = (100 \cdot 200) / 0,5 = 40000 \text{ s} \approx 11 \text{ h} \quad (2.40)$$

Im optimalen Fall ist man dann während dieser Zeit fündig geworden. Sollte jedoch kein Rydbergzustand gefunden worden sein, muss man den Bereich bis auf die Fehlergrenzen der Vorhersagen ausdehnen und im ungünstigsten Fall wäre somit eine Scanzeit von

$$t_{\text{Ryd-mess-max}} = 11 \cdot 10 \text{ h} = 110 \text{ h.}$$

notwendig, um den kompletten Vorhersagebereich abzudecken. Eine mögliche Reduktion der Zeit ist dann nur durch den Einsatz mehrerer simultan scannender Farbstofflaser möglich.

## 2.5 Vorüberlegungen zur Liniensuche in Nobelium

In den folgenden Kapitel werden zunächst die Bedingungen an die experimentelle Methode gestellt, damit eine erfolgreiche Umsetzung des Experiments gelingen kann. Danach werden die Anforderungen aufgelistet, die letztlich zur Auswahl der verwendeten Lasersysteme geführt haben. Das darauffolgende Kapitel gibt dann eine Übersicht über die experimentelle RADRIS-Methode.

### 2.5.1 Anforderungen an die experimentelle Methode

Eine der bewährten Methode zur Untersuchung atomarer Spektren ist die Breitbandanregung der Elektronenhülle durch Elektronenstöße [96], bei der Fluoreszenzlinien in einem weiteren Bereich simultan aufgenommen werden können. Mit Hilfe dieser Methode wurde das schwerste Element Einsteinium mit  $Z=99$  erfolgreich untersucht [95]. Jedoch ist es im Fall schwererer Elemente nicht möglich, diese Technik anzuwenden, da die benötigte Menge an Atomen im Bereich von wenigen  $\mu\text{g}$  liegt und die tatsächlich verfügbare Rate um einen Faktor  $10^{15}$  niedriger ist.

Eine andere Methode der spektroskopischen Untersuchung von atomaren Strukturen basiert auf der Verwendung von Lasern, deren monochromatische Strahlung eine Anregung

einzelner Elektronen der Elektronenhülle des Atoms erlaubt. Diese Technik ist auch unter dem Namen **Resonanzionisationsspektroskopie**(RIS) [85] näher bekannt. Im Gegensatz zur Elektronenstoßanregung handelt es sich hierbei um eine hochselektive Technik, die sich nahezu untergrundfrei zur Anwendung bringen lässt. Diese Technik wird dabei in vielen Variationen angewendet [97–105]. Eine erste erfolgreiche Anwendung der RIS im Bereich der schweren Elemente war die exakte Bestimmung der Ionisationspotentiale der Aktiniden bis zum Element Einsteinium ( $Z=99$ ) [106]. Die dabei verwendete Methode ist die Resonant Ionization Mass Spectrometry (RIMS) [97, 98, 107] hatte eine Nachweiseffizienz von  $\epsilon_{\text{RIMS}} \approx 10^{-5}$  [106]. Ein Hauptproblem dieser Methode ist dabei die geringe Überlappzeit der Laser mit dem Atomstrahl selber. Eine weitere Erhöhung der Sensitivität bietet sich daher durch den Einsatz einer puffergasgefüllten Messapparatur als Stopp- und Speichermedium der produzierten Nuklide. Durch die Verwendung einer solchen Puffergaszelle lässt sich prinzipiell die Interaktionszeit zwischen Atomen und Laserstrahlen deutlich verlängern. Eine Methode, die auf der Verwendung einer Puffergaszelle basiert ist die bereits eingeführte IGRIS-Methode [85], mit der in Fermium erfolgreich optische Übergänge [84] identifiziert werden konnten. Diese Methode zielt allerdings auf die Untersuchung langlebiger Isotope im Bereich von mehreren Stunden bis Tagen ab. Bei dem zu untersuchenden Isotop  $^{254}\text{No}$  handelt es sich aber um einen Kern mit einer Halbwertszeit von 51 s, sodass die IGRIS-Methode nicht angewendet werden kann. Somit verbleibt lediglich eine auf dem Nachweis von radioaktiven Zerfällen basierende, hochsensitive Laserspektroskopische Methode, die den gestellten Bedingungen genügt. Hierbei handelt es sich um die sog. **RA**diation **D**etected **R**esonance **I**onization **S**pectroscopy (RADRIS) [1] in einer Puffergaszelle. Diese Methode wurde erfolgreich zur Spektroskopie der Americium-Spaltisomere angewandt [2, 31–34], die lediglich eine Halbwertszeit bis hinunter zu  $t_{1/2} \approx 5\text{ms}$  und mit einer Rate von 10/s produziert werden können.

## 2.5.2 Anforderungen an die Lasersysteme

Bei der Auswahl der zu verwendenden Lasersysteme müssen einige wichtige Aspekte berücksichtigt werden. Im Fall von Nobelium sind bis zum jetzigen Zeitpunkt keinerlei experimentelle Daten zu atomaren Zwischenniveaus vorhanden, lediglich theoretische Vorhersagen mit einer gewissen Unsicherheit grenzen den abzusuchenden Bereich für optisch anregbare Übergänge ein (vgl. 2.4). Es kann somit kein festes Anregungsschema genutzt werden, wie das bei einem Element mit bereits experimentell bestätigten atomaren Zwischenniveaus möglich ist.

Aufgrund der Uneinigkeit der theoretischen Vorhersagen in der exakten Position der atomaren Niveaus muss ein spektraler Bereich von  $\Delta\nu_1 \approx 5500\text{cm}^{-1}$  (vgl. 2.4.1) durchgestimmt werden. Gleichzeitig sollte im jeden Fall eine ausreichende Photonenflussdichte  $\Psi_1$  am Ort der Interaktion von Laser und Atomwolke gegeben sein, damit selbst schwache optische Übergänge angeregt und gesättigt werden können. Damit der abzuscannende Bereich in einem realistischen zeitlichen Rahmen durchgefahren werden kann, darf die spektrale

Bandbreite des Scanlasers nicht zu gering und andererseits aufgrund der zur effizienten Laseranregung benötigten hohen spektralen Leistungsdichte nicht zu groß sein. Notwendigerweise wird daher eine Bandbreite von 1 – 15 GHz gefordert.

Im Fall von Nobelium eignet sich lediglich die Nutzung eines zweistufigen Anregungsschema, da jeder weitere Anregungsschritt eine zusätzliche Unsicherheit und größeren experimentellen Aufwand bedeuten würde. Am effizientesten bei einem zweistufigen Anregungsschema wäre allerdings die Anregung in einen Rydbergzustand, da für beide Anregungsformen ein hoher Wirkungsquerschnitt erreicht werden kann (nachzulesen in Kapitel 2.3.1). Da es allerdings keine experimentellen Daten zu den Lagen der Rydbergzustände in Nobelium gibt, ist das ein hoffnungsloses Unterfangen.

Als einziger zielführender Ansatz zur Suche nach atomaren Niveaus bleibt somit die Verwendung eines zweistufigen Anregungsprozesses mit einem in der Wellenlänge festgehaltenen Ionisationslaser als zweiten Schritt (vgl. Kapitel 2.3.1). Hier ist zu beachten, dass der Wirkungsquerschnitt einer solchen Ionisation laut [87] stark abhängig von der eingestrahelten Wellenlänge des Ionisationslasers ist. Damit aber eine Ionisation bei Erreichen eines atomaren Zwischenniveaus garantiert werden kann, muss Gleichung 2.18 erfüllt werden. Der niedrigere Wirkungsquerschnitt bei der nichtresonanten Ionisation kann laut Gleichung 2.20 aber mit einem höheren Photonenfluss  $\Psi_2$  ausgeglichen werden. Es wird daher ein Lasersystem für den Ionisationsschritt benötigt, welches eine hohe Photonenflussdichte dauerhaft erzeugen kann.

Damit die genannten Bedingungen erfüllt werden können, wurde ein Konzept aus vier Farbstofflasern als Scanlaser mit der Nutzung von zwei Excimerlasern als Pumplaser und der Verwendung eines weiteren Excimerlasers als Ionisationslaser, welches mit dem experimentellen Aufbau im Detail in Kapitel 3.3 vorgestellt wird, realisiert. Farbstofflaser haben den Vorteil, dass durch die vielen verschiedenen Farbstoffe ein breiter spektraler Bereich [108, 109] abgedeckt werden kann. Zudem ist die spektrale Bandbreite mit etwa 3 – 10 GHz, abhängig von der emittierten Wellenlänge, im Rahmen dessen, was für eine optimale Aufteilung der Scanbereiche benötigt wird. Desweiteren weisen die Farbstoffe in der Regel eine hohe Konversionseffizienz von bis zu 10% für das UV und bis zu 25% im sichtbaren bis infraroten Frequenzspektrum auf [99], sodass mit der Nutzung von geeigneten Transportmitteln (vgl. 3.3) eine ausreichende Photonenflussdichte am Ort der Interaktion zwischen Laserstrahlen und Atomwolke garantiert werden kann.

Der Vorteil des Excimerlaser [110–112] als Ionisationslaser ist die hohe Photonenflussdichte, die bei einer Repetitionsrate bis zu 200 Hz am Experimentierplatz bereitgestellt werden kann. Mit einer XeF- Mischung kann eine Emissionswellenlänge von 351 nm erreicht werden, die für den zweiten Ionisationsschritt im Fall von Nobelium optimal geeignet ist <sup>4</sup>.

<sup>4</sup>Hierbei ist zu beachten, dass Gleichung 2.18 mit einem möglichen atomaren Niveau im Bereich der theoretischen Vorhersagen aus Kapitel 2.8 mit einem 351 nm Ionisationslaser in jedem Fall erfüllt ist.

### 2.5.3 Anforderungen an die Puffergaszelle

Für eine ausreichend hohe Nachweiseffizienz müssen einige Randbedingungen bei der Konzeption der Messapparatur gestellt werden. Damit ein gasförmiges Medium effektiv als Stop- und Speicherort genutzt werden kann, muss eine Vakuumentrennung zwischen der Messapparatur und dem Rest der Experimentieranlage vorgesehen werden. Die dafür verwendete Folie darf nicht zu dick sein, da sonst keine der Nobeliumionen die Folie passieren kann. Die Puffergaszelle muss in ihren geometrischen Maßen so definiert sein, dass keine Verluste durch Kollisionen der Nobeliumkerne mit den Barrieren der Messapparaturen auftreten. Bei der Wahl des passenden Puffergas muss darauf geachtet werden, dass durch das Stoppen im Gas möglichst wenige der Nobeliumkerne durch Neutralisation verloren gehen. Desweiteren muss die Gasreinheit beobachtet werden um Verluste durch mögliche Oxid- oder Hydroxidbildungen zu unterdrücken. Durch den Einsatz einer Folie zur Vakuumentrennung wird die Streuung der Atome im Gasvolumen propagiert. Dies führt dazu, dass nur ein Teil der gestoppten Nobeliumionen im Einflussbereich der Laserstrahlen liegen können. Eine weitere Notwendigkeit in der Konzeption der Puffergaszelle muss die Möglichkeit sein, die räumliche Verteilung der Nobeliumkerne zu komprimieren und gleichzeitig alle als geladene gestoppten Kerne zu neutralisieren. Eine letzte Voraussetzung zur erfolgreichen Spektroskopie ist das Vorhandensein von elektrischen Feldern zum Transport der Nobeliumionen zur Nachweisapparatur. Unter der Berücksichtigung der erwähnten Randbedingungen wurde die optische Puffergaszelle aus [35] mit einer horizontal beweglichen Schiebedurchführung, bestückt mit einem dünnen Fängerdraht aus Tantal, und zwei spiegelgleichen Transport- und Detektionssystemen bestehend aus 4 Elektroden und jeweils einem Halbleiterdetektor benutzt (Die Komponenten der Puffergaszelle werden in Abschnitt 3.2 detailliert beschrieben). Innerhalb dieser Puffergaszelle werden laserspektroskopische Untersuchungen mit der RADRIS-Methode durchgeführt. Das Prinzip der Methode wird dabei im nächsten Abschnitt erläutert.

### 2.5.4 Experimentprinzip

Das Nachweisprinzip der RADRIS-Methode [2] in der Puffergaszelle wird anhand von Abbildung 2.9 dargestellt. Hochgeladene Nobeliumionen, die durch den Geschwindigkeitsfilter SHIP [4] vom Primärstrahl separiert worden sind, passieren eine dünne Folie und werden mit Hilfe von elektrischen Feldern auf einem Tantaldraht aufgesammelt. Bei diesem Prozess findet eine Neutralisation der Nobeliumatome statt. Der nächste Schritt ist die gezielte Freisetzung der auf dem Tantaldraht befindlichen Nobeliumatome in das mit Argongas gefüllte räumliche Volumen. Nach der Evaporation bleiben die abgedampften Nobeliumatome für eine begrenzte Zeit in einem Volumen in der Nähe des Tantaldrahts. Simultan beginnen die Laser das räumliche Volumen um den Tantaldraht auszuleuchten. Hierbei handelt es sich um mehrere Farbstofflaser, die jeweils auf der Suche nach atomaren Niveaus in ihrer Wellenlänge verstimmt werden können. Desweiteren wird das Licht eines Excimerlaser für die nichtresonante Ionisation (vgl. Kapitel 2.18) eingestrahlt und mit dem Licht der Farbstofflaser innerhalb der Zelle überlagert. Wird von einem Farbstofflaser die Anregungsfrequenz

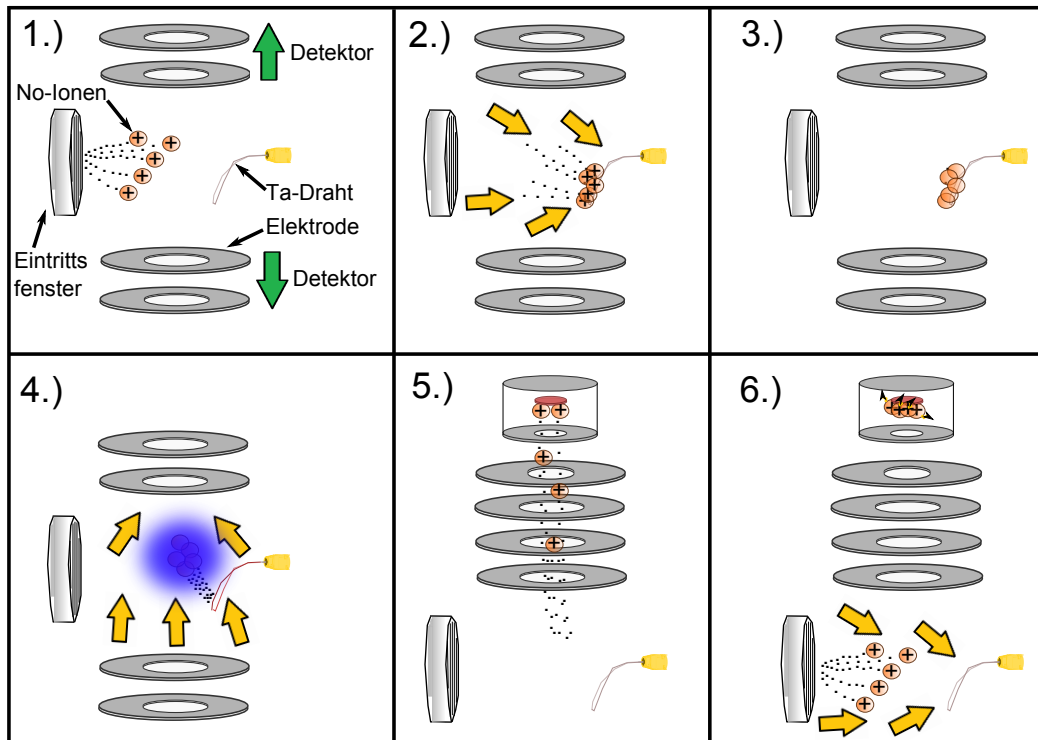


Abbildung 2.9: Prinzip der RADRIS-Methode in der Puffergaszelle mit dem Nachweis von radioaktiven Zerfällen. Die Nobeliumkerne passieren in (1) das Eintrittsfenster und werden dabei gestoppt. Nach dem Aufsaugen in (2) und der daraus resultierenden Neutralisation (3) werden sie atomar re-evaporiert und mit Hilfe eines Zwei-Stufen Anregungsprozess in (4) ionisiert. Nach einer erfolgreichen Ionisation lassen sich die Ionen mit Hilfe von elektrischen Feldern zu dem Detektor transportieren (5), auf dem der Ionisationsnachweis durch den charakteristischen Alphazerfall erbracht wird (6). Die gelben Pfeile markieren die Wirkungsrichtung der angelegten elektrischen Potentiale und die grünen Pfeile markieren den Weg zu den Detektoren.

des atomaren Niveaus eingestrahlt, so werden die Nobeliumatome ionisiert und mit angepassten elektrischen Potentialen auf den Detektor abgesaugt. Dort wird dann der charakteristische Alphazerfall abgewartet, welcher eine Bestätigung einer erfolgreichen Ionisation ist. Das Experiment wird dabei in zwei Phasen durchgeführt, wobei zur ersten Phase das Abstoppen der Kerne im Gas und das simultane Aufsammeln auf den Tantaldraht mit geeigneten elektrischen Feldern ermöglicht wird. Nach einer sog. Aufsammelzeit wird der Strahl geblockt. In dieser Phase findet der eigentliche Resonanzionisationsprozess statt, wie er in Abbildung 2.9 Teilbild 4-5 dargestellt ist. Die Detektion der Alphazerfälle findet hierbei während der ganzen Zeit statt und ist nicht von den jeweiligen Experimentphasen abhängig.



Schematisch sind die Messphasen in Abbildung 2.10 zu sehen. Der Messzyklus wird dabei durch das optimale Verhältnis von Lebensdauer zu Sammelzeit  $\epsilon_{\text{Zerfall}}$  [35] bestimmt und ist daher ein elementspezifischer Parameter (Eine genaue Beschreibung findet sich hierzu Kapitel 4.2 und Tabelle 4.4).

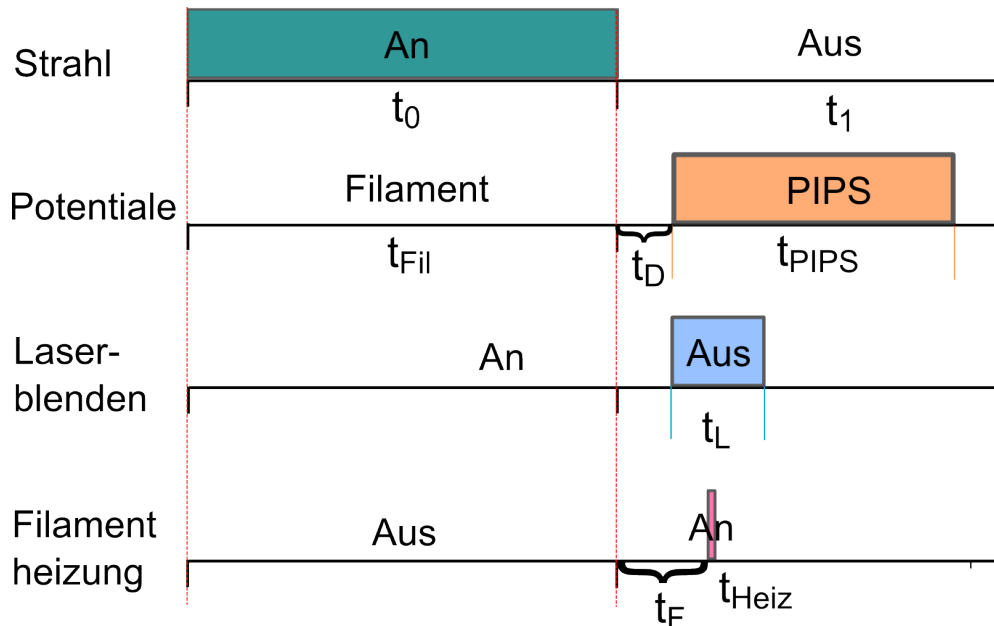


Abbildung 2.10: Zeitlicher Verlauf der Resonanzionisation mit der RADRIS-Methode in der Messapparatur. Unterteilt wird der Zyklus in zwei Hauptphasen, Strahl an mit der Zeit  $t_0$  und Strahl aus mit  $t_1$ .  $t_{\text{Fil}}$  und  $t_{\text{PIPS}}$  stehen für die Zeiten, in denen die Potentiale in Richtung des Fängerdrahts bzw. des Detektors geschaltet sind.  $t_L$  bezeichnet die Zeit, in der die Laserblenden zur Abschirmung der Laserstrahlen aus dem Strahlengang gefahren werden und somit die Laserstrahlen in die Puffergaszelle passieren lassen.  $t_{\text{Heiz}}$  bezeichnet die Länge des Heizpulses.  $t_D$  für die Potentiale und Laserblenden und  $t_F$  für die Filamentheizung sind definierte zeitliche Verzögerungen, die zum Start der Messphase addiert werden.

# Kapitel 3

## Experimenteller Aufbau

Dieses Kapitel beschreibt den experimentellen Aufbau der Apparatur zur Resonanzionisationsspektroskopie in einer Puffergaszelle. Dieser steht hinter dem Geschwindigkeitsfilter SHIP, welcher in Kapitel 3.1 beschrieben wird. Die Puffergaszelle und die Datenaufnahme werden jeweils in den Kapiteln 3.2, 3.2.1 und 3.2.4 detailliert erläutert, die Lasersysteme und die Einkopplung der Laserstrahlen in die Puffergaszelle werden in den Kapiteln 3.3 und 3.3.1 beschrieben. Eine umfassende Beschreibung der Experimentsteuerung findet man in Abschnitt 3.4.

### 3.1 Der Geschwindigkeitsfilter SHIP

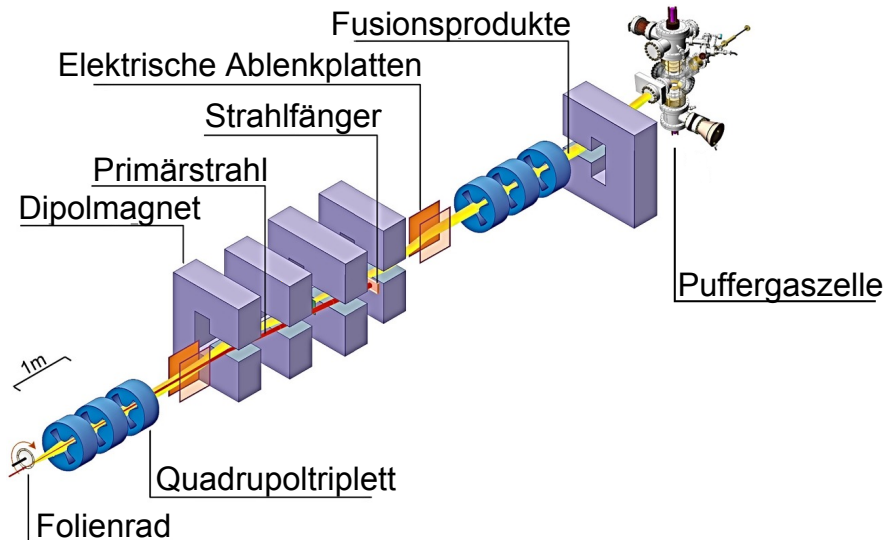


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung des Geschwindigkeitsfilters SHIP. Der Primärstrahl vom UNILAC wird nach der Interaktion mit den Folien auf den Strahlfänger geführt. Nur die Fusionsprodukte mit passender Geschwindigkeit können den Geschwindigkeitsfilter passieren und stehen dem Experiment (angedeutet durch die Puffergaszelle) zur Verfügung. Grafik entnommen und bearbeitet aus [113]<sup>5</sup>.

Der Geschwindigkeitsfilter SHIP (Separator for Heavy Ion reaction Products) an der GSI in Darmstadt wurde zur effizienten Trennung der Fusionsprodukte vom Primärstrahl konstruiert [3, 114]. Eine schematische Abbildung von SHIP ist in Grafik 3.1 gegeben. Am Anfang des Geschwindigkeitsfilters SHIP befindet sich das Folienrad mit jeweils 8 getrennt voneinander eingesetzten Folien mit einer typischen Dicke von  $0,5 \frac{\text{mg}}{\text{cm}^2}$ .

Zur Produktion von Nobelium werden dabei Folien aus isotonenreinem Blei eingesetzt, die dann mit einem hochenergetischen Kalziumstrahl mit einer kinetischen Energie von 4,55 MeV/u bestrahlt werden und als Fusionsprodukte die gewünschten Nobeliumisotope bilden können (vgl. Abschnitt 2.1). Typische Strahlintensitäten, die vom UNILAC geliefert werden können, liegen dabei im Bereich von  $1 \mu\text{A}_p$  [4]. Nach dem Target befinden sich ein Quadrupoltriplett zur Fokussierung des divergenten Ionenstrahls aus dem Target. Zur Trennung der Fusionsprodukte vom Primärstrahl kommt ein sog. Geschwindigkeitsfilter zum Einsatz [114]. Ausgenutzt wird hierbei eine Kombination aus einem elektrischen und ma-

<sup>5</sup>Reprinted from *Prospects for laser spectroscopy, ion chemistry and mobility measurements of superheavy elements in buffer-gas traps*, Nuclear Physics A, Volume 944, December 2015, Pages 492-517, H.Backe, W.Lauth, M.Block, M.Laatiaoui. Copyright (2015) with permission from Elsevier.

netischen Feld, die lotrecht zueinander stehen. Die Kraft, die dann auf ein Ion ausgeübt wird, lässt sich durch folgende Bewegungsgleichung beschreiben

$$m\ddot{\vec{a}} = q(\vec{E} + \vec{v} \times \vec{B}). \quad (3.1)$$

Für Teilchen mit der Geschwindigkeit

$$|\vec{v}| = \frac{|\vec{E}|}{|\vec{B}|} \quad (3.2)$$

heben sich die Kräfte auf und nur diese können den Geschwindigkeitsfilter passieren. Durch die passende Wahl der elektrischen und magnetischen Felder können nur Teilchen mit einer bestimmten Geschwindigkeit  $v_0$  den Geschwindigkeitsfilter durchqueren. Die ausgeübte Kraft auf diese Teilchen ist also effektiv null. Die Separation ist damit unabhängig vom Ladungszustand und Masse der Fusionsprodukte, wohl aber von deren Geschwindigkeitsverteilung. Als abschliessendes ionenoptisches Element des Geschwindigkeitsfilters dient ein Quadrupoltriplett zur Fokussierung sowie ein zusätzlicher magnetischer Dipol zur weiteren Separation von gestreuten hochenergetischen Primärteilchen. Zur Identifikation der Fusionsprodukte und zur Bestimmung der Strahlgeometrie kommt ein Flugzeitdetektor (ToF) und ein aus 16 einzelnen Streifen bestehender Silizium-Detektor zum Einsatz. Der Einsatz des Flugzeitdetektors erlaubt eine grobe Identifikation der Fusionsprodukte zur Optimierung der Felder, letztlich zur Reduktion von ungewollten Untergrundaktivitäten. Der Streifendetektor dient zur Abschätzung der einem bestimmten Strahlstrom verfügbaren Rate an Fusionsprodukten, wie es in den Kapiteln 4.3.7 und 5.2.8 gezeigt wird. Weitere Informationen bezüglich SHIP können aus [3] entnommen werden.

## 3.2 Die Puffergaszelle

Die Puffergaszelle wird verwendet, um die Fusionsprodukte zu stoppen und für anschließende Spektroskopie zur Verfügung zu stellen. Sie wurde erstmals im Jahr 2007 mit dem Ziel der Laserspektroskopie an Nobelium erwähnt [35]. Der Aufbau der Puffergaszelle wird in den Abbildungen 3.2 und 3.3 dargestellt. Sie besteht aus insgesamt vier Sektionen. Dabei handelt es sich um die **optische Sektion** mit Eintrittsfenster, zwei **CF-200 Kreuzstücken** und einer RGA Sektion. Vor der Puffergaszelle ist eine sogenannte Verbindungskammer eingebaut (nicht zu sehen in Abbildung 3.2), die die Puffergaszelle mit SHIP verbindet. Folgend werden die einzelnen Komponenten der Sektionen detailliert beschrieben.

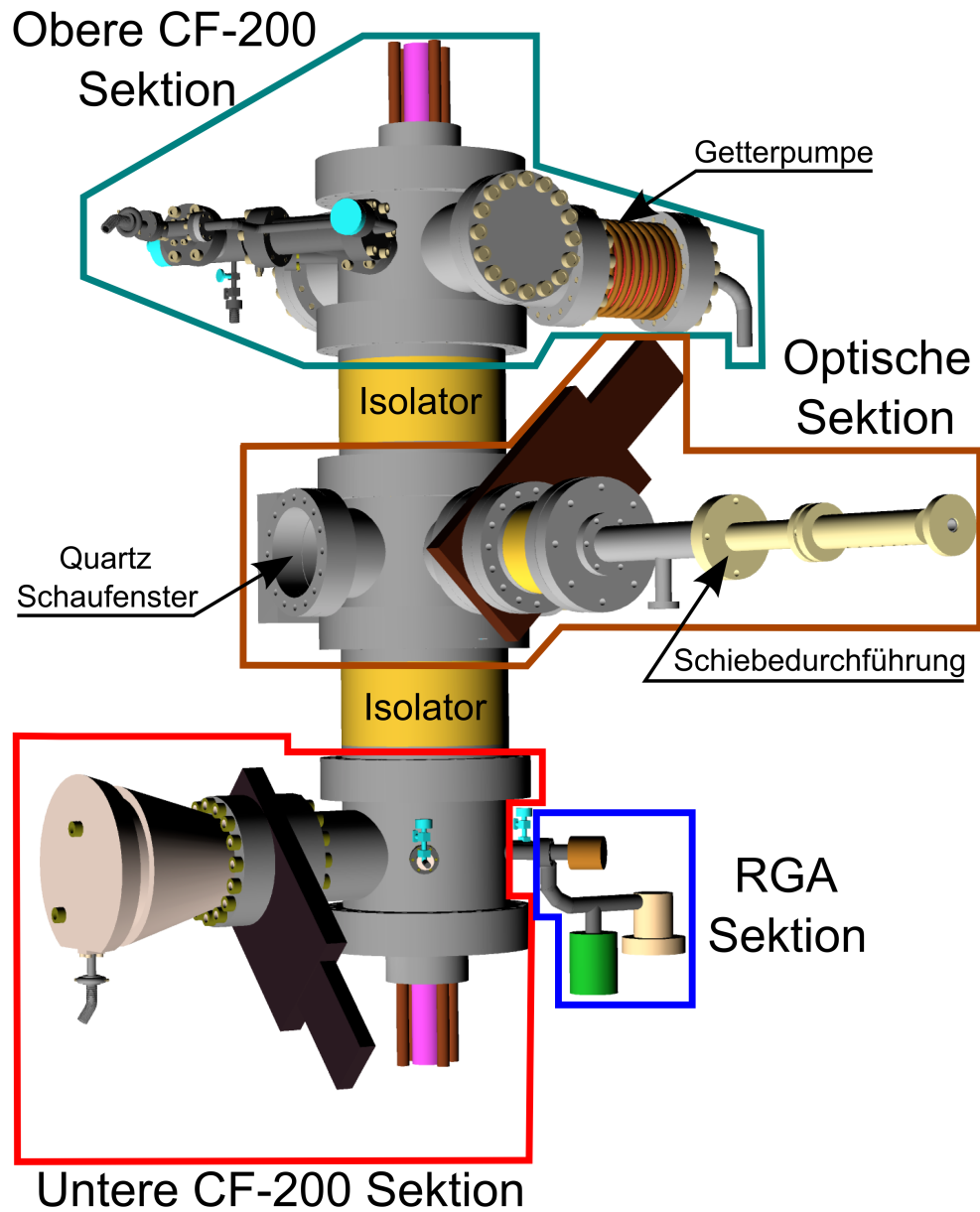


Abbildung 3.2: 3D - Zeichnung der Puffergaszelle mit Unterteilung in die einzelnen Sektionen. Zwischen der optischen und den CF-200 Sektionen ist jeweils ein Isolator zur elektrischen Trennung der einzelnen Komponenten installiert.

## Verbindungskammer

Die Verbindungskammer ist von der restlichen Messapparatur elektrisch isoliert und beherbergt zum Anpassen der Energie der Fusionsprodukte drei Abbremsfolien aus dem Verbundmaterial Mylar mit einer Dicke von 1, 1,5 und 4  $\mu\text{m}$ . Desweiteren sind auf einer Schiebedurchführung drei Si-Pin Dioden **S1337-1010** der Firma Hamamatsu [115] mit einer aktiven Querschnittsfläche von jeweils 1  $\text{cm}^2$  angebracht. Diese können zu Diagnosezwecken der Fusionsprodukte in die Strahlachse geschoben werden.

## Optische Sektion

Die optische Sektion besteht aus einem CF-200 Kreuzstück und bietet Platz zur Unterbringung des Eintrittsfensters, der Schiebedurchführung und zwei Schaufenster aus Quarzglas. Ein Aussenanblick der optischen Sektion wird in Abbildung 3.2 gezeigt, während die für das Experiment relevanten Komponenten in Abbildung 3.3 dargestellt sind.

Die Halterung des **Eintrittsfenster** besteht aus mehreren Einzelteilen mit einer Gesamtlänge von 45 mm. Die Außen- bzw. Innendurchmesser des Fensters betragen 65 bzw. 56 mm. Das zentrale Element des Fensters ist das Stützgitter mit einem Aussendurchmesser von 55 mm und einem Innendurchmesser von 52 mm. Die rechteckige Netzstruktur mit einer Dicke von 0,5 mm mit der Kantenlänge von 8,5 mm dient als Stütze für eine einseitig aluminisierte, 3,5  $\mu\text{m}$  dünne Mylar-Folie, welche die Vakuumkammer von SHIP von der gasgefüllten Messapparatur trennt. Die Aluminisierung der Trennfolie dient dabei der elektrischen Leitfähigkeit des Eintrittsfensters. Ein **Tantaldraht** ist aufgespannt zwischen zwei Stromdurchführungen einer Schiebedurchführung. Diese hat einen axialen Hub von 280 mm. Diese Hublänge ist notwendig, damit der Tantaldraht in eine für das Experiment relevante Position verfahren werden kann (vgl. Kapitel 4.3.3). Im zurückgefahrenen Zustand kann die Schiebedurchführung zudem von der restlichen Messapparatur über ein Schiebeventil abgetrennt werden und separat belüftet werden. Dies ist notwendig im Falle eines Filamentdrahtwechsels während des Experiments.

## CF-200 Sektionen

Die CF-200 Sektionen sind zwei Kreuzstücke, die durch jeweils eine CF200-Isolatorkeramik von der optischen Sektion elektrisch isoliert sind. Im Inneren befindet sich jeweils ein baugleiches **Elektroden-Detektorsystem**, bestehend aus vier Elektroden und einer Detektorhaltervorrichtung. Drei der Elektroden sind mit einem Öffnungsdurchmesser von 44 mm gefertigt und die letzte Elektrode mit einem Öffnungsdurchmesser von 38 mm. Die Elektroden sind im Abstand von 35 mm voneinander getrennt angebracht. Nach der vierten Elektrode befindet sich im Abstand von 20 mm ein zylindrisch geformtes Edelstahlgehäuse mit einer 30 mm Öffnung. Im Inneren dieses Edelstahlgehäuses wird in einer Haltevorrichtung ein Detektor des Typs PIPS (engl. Passivated Implanted Planar Silicon ) **A600-22AM** der Firma

Canberra [116] mit einer aktiven Fläche von  $600 \text{ mm}^2$  platziert. Die Öffnung der Haltevorrichtung ist mit einer einseitig aluminisierten Polyamidfolie mit einer Dicke von  $30 \frac{\mu\text{g}}{\text{cm}^2}$  bedeckt. Der Abstand zwischen Polyamidfolie und Detektor beträgt etwa 9,5 mm, korrespondierend zu einer Raumwinkelabdeckung des Detektors für  $\alpha$ -Zerfälle von  $\epsilon_{\text{detekt}} = 0,4$ . Fixiert und gegeneinander isoliert wird der Aufbau aus Elektroden und Detektor mit Hilfe von vier Keramikhohlstangen, in deren Inneren dünne isolierte Kupferdrähte für die elektrische Versorgung der einzelnen Elektroden und des Detektors vorgesehen sind. An der **unteren CF-200 Sektion** befinden sich eine Turbomolekularpumpe des Typs **HC 200** der Firma Leybold [117], die durch ein Schiebeventil der Firma VAT von der restlichen Messapparatur vakuumtechnisch separiert werden kann. Desweiteren sind Messröhren des Typs (**PKR-251 - Compact Full Range Gauge** und **CMR - Active Line** der Firma Pfeiffer Vacuum [118] [119]) zur Auslese des Gasdrucks im Inneren der Puffergaszelle installiert. Die Versorgung mit Puffergas wird mit Hilfe eines elektronischen Dosierventils geregelt. Zusätzlich dazu sind zwei Absperrventile vorgesehen, die als Verbindung der Hauptkammer zur RGA-Sektion angebracht sind.

An der **oberen CF-200 Sektion** befindet sich eine Getterpumpe des Typs **C-100 MK5** der Firma SAES Getter mit dem aktiven Gettermaterial ST707 [120], ein Bypass mit einem Nadelventil und einem Swagelok Drehventil [121] und ein Bypass, welcher das Kreuzstück mit der Verbindungskammer verbindet

## RGA-Sektion

In diesem Bereich der Puffergaszelle ist der RGA des Modells **QME 200** der Firma Pfeiffer Vacuum [122] integriert. Der Anschluss an die restliche Puffergaszelle geschieht dabei über ein Dosierventil. Diese Sektion verfügt zudem über eine separate Turbopumpe des Typs **EXT75 DX** der Firma Edwards [123] und eine Messröhre des Typs **PKR-251 - Compact Full Range Gauge** der Firma Pfeiffer Vacuum [124] zur Messung des Gasdrucks innerhalb der RGA-Sektion.

### 3.2.1 Vakuumherzeugung und Gasversorgung der Puffergaszelle

Zur **Vakuumherzeugung** innerhalb der Puffergaszelle, den zugehörigen Bypässen, der QMS-Sektion und der Verbindungskammer wurde ein System bestehend aus zwei Vorvakuum-pumpen und insgesamt drei Turbomolekularpumpen (TMP) realisiert.

Die TMP der unteren CF-200 Sektion (Leybold HC-200) hat laut Hersteller ein Saugvermögen von 200 l/s bei  $N_2$  [125] und die TMP der RGA-Kammer (Edwards EXT 75DX) kommt auf einen Wert von etwa 58 l/s bei  $N_2$  [123]. Beide werden von einer ölfreien Scrollpumpe des Modells **nXDS 6i** der Firma Edwards mit einer maximalen Saugleistung von  $g = 6 \frac{\text{m}^3}{\text{h}}$  [126] verwendet. Zur Entfernung von Verunreinigungen innerhalb der Puffergaszelle kommen separat beschaltbare Heizwendel, die mit Netzgeräten des Modells **HT30** der Firma Horst GmbH [127] verbunden sind, zum Einsatz. Diese sind an allen Sektionen der Puffergaszelle montiert. Zur Auslese der Temperatur der einzelnen Sektionen wurden Tem-

peratursensoren der Marke Phidget der Firma No DNA [128] angebracht.

Nach einer Heizphase von etwa 12-24 h, in der auch die Getterpumpe mit einer Temperatur von 400 °C betrieben wird, lässt sich ein Enddruck von  $p_{\text{Cell}} = 5 \cdot 10^{-8}$  mbar in der Puffergaszelle und  $p_{\text{RGA}} = 2 \cdot 10^{-9}$  mbar in der RGA-Sektion erreichen. Kurz bevor Gas in die Puffergaszelle eingelassen wird, wird mit Hilfe eines Schiebeventils die TMP von der Puffergaszelle abgetrennt.

Die Verbindungskammer besitzt eine separate Vakuumlinie, bestehend aus einer ölfreien Scrollpumpe **XDS 10** der Firma Edwards mit einer Saugleistung von  $g = 10 \frac{\text{m}^3}{\text{h}}$  [123] und einer TMP des Typs **STP-400** mit einer Saugleistung von 420 l/s für  $\text{N}_2$  [129]. Dieses System ist durch ein Eckventil beim Evakuieren der Verbindungskammer abgetrennt und wird erst bei Erreichen eines Drucks von  $p_{\text{Verbindungskammer}} \approx 1 \cdot 10^{-1}$  mbar hinzugeschaltet. Gleichzeitig wird der Fluss zur Messapparatur durch ein Eckventil unterbrochen, sodass beide Systeme dann autark voneinander sind. Nach dem Erreichen eines Drucks von  $p_{\text{Verbindungskammer}} = 1 \cdot 10^{-4}$  mbar wird das Schiebeventil zu SHIP geöffnet und der Enddruck reduziert sich durch die zusätzliche Pumpkapazität der SHIP Kammer zu  $p_{\text{Verbindungskammer}} \approx 2 \cdot 10^{-6}$  mbar. Aufgrund der dünnen Folien, die sich sowohl auf dem Eintrittsfenster, aber auch vor den PIPS-Detektoren befinden, ist die Geschwindigkeit, mit der die Puffergaszelle evakuiert und befüllt werden darf, auf einen Maximalwert von  $\Delta p_{\text{cell}} \leq 1 \frac{\text{mbar}}{\text{s}}$  limitiert.

### 3.2.2 Gasversorgung der Messapparatur

Einer der wesentlichen Punkte, die die Effizienz der Puffergaszelle maßgeblich beeinflussen, ist die Reinheit des verwendeten Puffergases. Verunreinigungen wie z.B. Wasser oder Sauerstoff im Gas sind verantwortlich für Verluste, die durch Neutralisation oder Molekülbildung der Nobeliumkerne entstehen können. Als Puffergas kommt das Edelgas Argon mit einer Reinheit von 99,9999% (6.0) zum Einsatz. Zur weiteren Reduktion der Unreinheiten in dem Gas wird ein Gasgetter des Typs **Mono Torr** der Firma SAES Pure Gas [130] benutzt. Dieser senkt das Niveau der Verunreinigungen auf ppb (parts per billion). In die Puffergaszelle gelangt das somit zusätzlich gereinigte Gas über ein elektrisch betriebenes Gasflussventil der Firma Pfeiffer [131], welches an die untere CF-200 Sektion angeschlossen ist. Die Überwachung des Gasdrucks über einen langen Zeitraum hinweg geschieht durch die Auslese des Drucks mit einem Kapazitron und durch die benutzerdefinierte Steuerung des Gasflussventils.

Durch die Anbringung eines Nadelventils mit einer konstanten Leckrate zur Vorvakuumspumpe an der oberen CF-200 Sektion lässt sich eine permanente Erneuerung des Puffergases innerhalb der Puffergaszelle realisieren (in Abbildung 3.3 angedeutet durch die orangenen Pfeile). Dabei wird während des Experimentierbetriebs die Reinheit des Gases mit Hilfe eines Restgasanalysators (RGA) überwacht. Der RGA befindet sich in der RGA-Sektion, welche mit der Puffergaszelle über ein weiteres Nadelventil verbunden ist. Durch dieses Ventil gelangt ein kleiner Teil des Puffergases in die RGA-Sektion mit der Limitierung, dass der Gasdruck innerhalb der Kammer nicht über einen Wert von  $p_{\text{RGA}} = 1 \cdot 10^{-5}$  mbar ansteigt. Erreichen die Partialdrücke von Sauerstoff und Wasserstoff im Verlauf des Experiments ei-



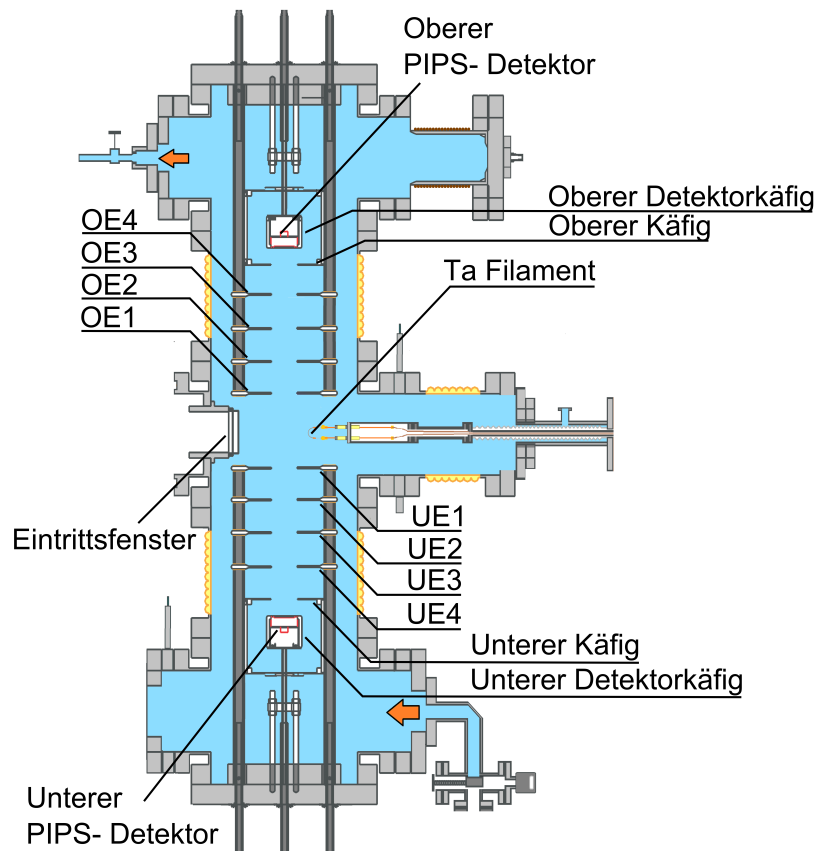


Abbildung 3.3: Schematische 2D-Darstellung der Puffergaszelle aus Abbildung 3.2. Zu sehen ist die Schiebedurchführung mit einem dünnen leicht gebogenen Tantaldraht, welcher auf zwei Stromdurchführungen aufgespannt wird. Eingehüllt wird das der Tantaldraht durch zwei baugleiche Elektroden-Detektorsysteme, die aus 4 Elektroden und einem PIPS-Detektor in einer speziellen Halterung bestehen. In der Abbildung sind die Elektroden durch Kürzel markiert (OE1 ist die Kurzform für Obere Elektrode 1, UE1 steht für Untere Elektrode 1 usw.). Die orangenen Pfeile markieren die Flußrichtung des Puffergases während des Experimentierbetriebs.

nen bestimmten Wert, wird der Experimentierbetrieb vorübergehend eingestellt und eine komplette Erneuerung des Puffergas findet statt. Analog zur Evakuierung des Puffergaszelle muss bei der Befüllung der Puffergaszelle mit dem Puffergas Argon darauf geachtet werden, das die Füllrate nicht 1 mbar / s übersteigt (vgl. Abschnitt 3.2.1).

### 3.2.3 Elektrodenpotentiale und Filamentheizung

In diesem Kapitel werden im Folgenden die elektrischen Potentiale der einzelnen Elektroden innerhalb der Puffergaszelle und der Heizmechanismus des Filamentdrahts beschrieben. Wesentliche Schritte der RADRIS-Methode (vgl. Abschnitt 2.5.4) werden durch die Lage der elektrischen Feldlinien im Inneren der Puffergaszelle beeinflusst. Es ist daher notwendig, 14 Komponenten der Puffergaszelle separat voneinander auf ein definiertes elektrisches Potential zu legen. Zu diesen 14 Komponenten, die in Abbildung 3.3 zu sehen sind, zählen unter anderem das **Kreuzstück der optischen Sektion** im Verbund mit den Eintrittsfenster, das innere Gehäuse der PIPS-Detektoren (im Folgenden als **Oberer Detektorkäfig** und **Unterer Detektorkäfig** bezeichnet), das äussere Gehäuse der PIPS-Detektoren (**Oberer bzw. Unterer Käfig**), acht Elektroden (**Obere Elektrode 1-4**, abgekürzt mit OE1-4, und **Untere Elektrode 1-4** in der Kurzform UE1-4) und der Tantaldraht. Alle genannten Komponenten verfügen über ein separates Netzgerät und eine SHV (aus dem Englischen *Save High Voltage*) Verbindung. Als Netzgeräte sind Hochspannungsmodule des Modells **HCE-3500** und **HCE-2000** der Firma FuG [132] im Einsatz. Diese zeichnen sich durch ihre Schaltzeit von 300 ms bei einer Potentialdifferenz von 1000 V aus. In Tabelle 3.1 werden die für das Experiment typischen Spannungskonfigurationen angegeben. Dabei wird zwischen den beiden Betriebsmodi **Potentialkonfiguration Tantaldraht**, bei dem die elektrischen Feldlinien in Richtung des Tantaldrahts zeigen, und **Potentialkonfiguration Detektor**, bei dem Ionen in Richtung der PIPS-Detektoren transportiert werden, unterschieden. Von besonderer Bedeutung ist die Versorgung des Tantaldrahts mit einem kurzen Heizpuls zum Abdampfen der auf dem Draht gesammelten Fusionsprodukte. Da sich allerdings der Tantaldraht permanent auf einem definiertem elektrischen Potential befindet, kann kein normales Netzgerät verwendet werden. Zu diesem Zweck wird ein speziell dafür konzipiertes Netzgerät des Modells **PSI-8032-10 DT** [133] mit einer Ausgangsstromstärke von 0-10 A der Firma EA verwendet. Das Netzgerät verfügt über die Besonderheit einer galvanischen Trennung und ermöglicht die Verwendung eines benutzerdefinierten Potentials am Ausgang des Netzgerätes. Zur Auslese der Temperatur des Tantaldrahts kam ein Strahlungsthermometer des Modells **Impact IS 8 Advanced** der Firma Lumasense [134] zum Einsatz.

### 3.2.4 Datenaufnahme (DAQ)

Das Datenaufnahmesystem wurde zur Registrierung von einzelnen radioaktiven  $\alpha$ -Zerfällen bis hin zu einer Rate von 8000 /s [135] an auftretenden Zerfallsereignissen auf dem Detektor konzipiert. Eine grafische Darstellung der Datenaufnahme wird in Abbildung 3.4 gegeben. Nach einem erfolgreichen Ionisationsprozess werden die radioaktiven Zerfälle der auf der dünnen Folie gesammelten Ionen mit Hilfe des in Abschnitt 3.2 eingeführten PIPS-Detektors registriert (Abbildung 3.4(a)).

Die  $\alpha$ -Energie -äquivalente Ladung an der Anode des Detektors wird mit Hilfe eines ladungsempfindlichen Vorverstärkers des Typs 2004<sup>6</sup> der Firma Canberra [136] bei einer Detektorvorspannung (BIAS) von +50 V in ein Spannungssignal mit einem steilen Anstieg im Bereich

<sup>6</sup>Detektionsrate bis zu  $4,5 \cdot 10^6 \frac{\text{MeV}}{\text{s}}$  [136]

Tabelle 3.1: Typische Spannungswerte an den Elektroden der Puffergaszelle aus Abbildung 3.3 während des Experimentierbetriebs. Hierbei sind die angegebenen Potentiale in Abhängigkeit der Betriebsmodi aus Abbildung 2.10 angegeben. Die Potentialkonfiguration Tantaldraht (Kfg Tantaldraht) sorgt dafür, dass Ionen auf den Tantaldraht aufgesammelt werden, während durch die Potentialkonfiguration Detektor (Kfg Detektor) die in der Puffergaszelle gestoppten Ionen auf den oberen PIPS-Detektor transportiert werden.

Bauteil	Kfg Tantaldraht	Kfg Detektor
Oberer PIPS-Detektor	0 V	0 V
Oberer Detektorkäfig	0 V	0 V
Oberer Käfig	253 V	253 V
Obere Elektrode 4 (OE4)	330 V	330 V
Obere Elektrode 3 (OE3)	397 V	397 V
Obere Elektrode 2 (OE2)	800 V	460 V
Obere Elektrode 1 (OE1)	749 V	999 V
Optische Sektion	749 V	1025 V
Tantaldraht	300 V	1025 V
Untere Elektrode 1 (UE1)	749 V	1028 V
Untere Elektrode 2 (UE2)	800 V	460 V
Untere Elektrode 3 (UE3)	397 V	397 V
Untere Elektrode 4 (UE4)	330 V	330 V
Unterer Käfig	253 V	253 V
Unterer Detektorkäfig	0 V	0 V
Unterer PIPS-Detektor	0 V	0 V

von 20-30 ns und einer langen Abklingzeit von etwa 50  $\mu$ s verstärkt (Abbildung 3.4(b))

Als Hauptverstärker wurde ein spektroskopischer Verstärker der Firma Ortec mit der Modellnummer 471 [137] gewählt. Der Hauptverstärker erzeugt aus dem Signal des Vorverstärkers ein bipolares Signal (Abbildung 3.4(c)) mit einer Dauer von 2-4  $\mu$ s und verstärkt es um einen einstellbaren Faktor. Die erhaltene Signalamplitude ist dann im Arbeitsbereich des Verstärkers proportional zur Energie des detektierten  $\alpha$ -Teilchens.

Das Herzstück der Datenaufnahme ist eine Field Programmable Gate Array (FPGA) basierte Multifunktions-DAQ-Karte PXI-7833-R der Firma National Instruments [138] (Abbildung 3.4(e)). Neben jeweils acht Analogeingängen und -ausgängen mit einer Auflösung von 16 bit sind bis zu 96 Multifunktionsdigitalleitungen vorhanden, die sowohl als Eingänge, Ausgänge, Counter oder als benutzerdefinierte Logik verwendet werden können. Genauere Spezifikationen des Datenaufnahmемoduls finden sich unter [138]. Da die Abtastrate der Datenaufnahme lediglich 200 MS/s beträgt, wird eine Spitzenwert dektierende Abtast- und Halte-Einheit (Eigenbau der LMU München), verwendet (Abbildung 3.4(d)). Dieser tastet das Signal des Hauptverstärkers nach seinem Maximum ab und stellt für eine Zeitspanne

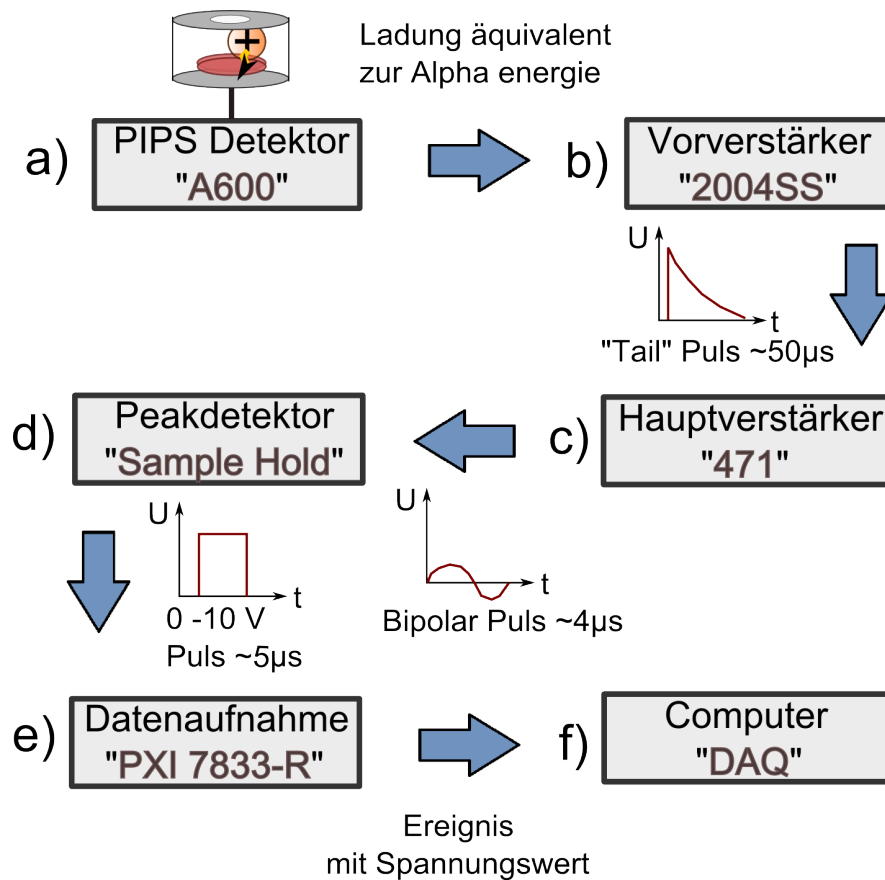


Abbildung 3.4: Schematischer Arbeitsplan der Datenaufnahme von der Registrierung eines  $\alpha$ -Zerfalls (a) bis zur Darstellung auf einem Computer mit Hilfe eines dedizierten Programms (f). Weitere Informationen finden sich im Text.

von mindestens  $5 \mu\text{s}$  diesen Wert als konstantes Spannungssignal zur Auslese zur Verfügung. Diese Signale sind dem dynamischen Bereich des Analog-Digital-Konverters (ADC) angepasst und können Werte von 0 bis +10 V betragen. Der Peakdetektor hat zusätzlich die Möglichkeit, ein Gate-Signal zu erzeugen, welches die Auslese durch den ADC antriggert. Als letztes Glied in der Signalverarbeitungskette des Datenaufnahmesystems steht der Messrechner (Abbildung 3.4(f)), der mit dem DAQ-Modul über eine PCI-Express (PCI-E) Schnittstelle verbunden ist. Die ausgelesenen Signale des PXI-7833-R Moduls werden durch ein auf der Entwicklungsumgebung LabView [139] basierendem Programm dargestellt. Hierbei können die registrierten Zerfallsereignisse auf dem PIPS-Detektor nach ihrer jeweiligen  $\alpha$ -Energie und dem zeitlichen Auftreten dargestellt werden.

Das Datenaufnahmesystem wurde auf Verlässlichkeit und Leistungsfähigkeit getestet. Durchgeführt wurde dies mit einem Pulsgenerator, mit dem einkommende Ereignisse mit unterschiedlich hoher Rate simuliert wurden. Unterhalb einer Signal-Repetitionsrate von 8 kHz

liegen die Verluste durch die Totzeit des Datenaufnahmesystem bei etwa 0.8% und steigen bis auf 2% bei einer Signal-Repetitionsrate von 10 kHz an [135]. In weiteren Tests wurde zudem die Langzeitstabilität erfolgreich getestet [135].

### 3.3 Lasersysteme

Für die dauerhafte Etablierung eines lasergestützten Experimentierbetriebs wurde die Entscheidung getroffen, ein permanentes Laserlabor einzurichten, das sich in unmittelbarer Nähe zur Puffergaszelle befindet, um die Transportwege für das Laserlicht kurz zu halten. Einen schematischen Überblick über die verwendeten Lasersysteme wird in Abbildung 3.5 gegeben. Aufgrund der Anforderungen aus Kapitel 2.5.2 an die Lasersysteme fiel die Entscheidung auf die Kombination von Excimerlasern mit Farbstofflaser zur Realisierung der Suche nach den Anregungszuständen in Nobelium. Abgerundet wird das Ganze durch die zusätzliche Verwendung eines Nd-YAG Laser mit einem Optical Parametric Oscillator (OPO)-System. Im Folgenden werden die Excimerlaser mit den Farbstofflasern und der Nd:YAG - Laser mit dem OPO System getrennt voneinander eingeführt.

#### Excimerlaser gepulste Farbstofflaser

Insgesamt befinden sich drei Excimerlaser der Firma Lambda Physik im Einsatz (vgl. Abbildung 3.5). Hierbei werden die Modelle LPX210i und LPX240 [140] bei einer Emissionswellenlänge von 248 nm bzw. 308 nm zum Pumpen von insgesamt 4 Farbstofflasern verwendet. Alle Farbstofflaser werden für die Suche nach den atomaren Anregungszuständen in Nobelium verwendet, also für den ersten Schritt im Zweistufen-Photoionisationsprozess (vgl. 2.3.1), während als nichtresonanter zweiter Schritt das Laserlicht bei 351/353 (XeF) nm eines weiteren Excimerlasers (Lambda Physik, LPX220 [140]) genutzt wird.

Die Excimerlaser zeichnen sich durch ihre hohe Pulsenergie ( $\approx 50 - 150$  mJ/Puls) bei einer möglichen Repetitionsrate von bis zu 200 Hz und einer durchschnittlichen Pulslänge von 18 ns. Das physikalische Prinzip hinter diesem Typ Laser wird dabei genau in [141] erklärt. Jeweils zwei Farbstofflaser werden von einem Excimerlaser gepumpt. Bei den Farbstofflasern handelt es sich um die Modelle FL2003, 3002, 3003 und 2003 der Firma Lambda Physik [142]. Das Licht der Excimer Laser wird verwendet um spezielle Farbstoffe, die in organischen Lösungsmitteln aufgelöst sind, optisch anzuregen. Die Farbstoffe emittieren wiederum Licht in einem breiten Frequenzband, welches gegenüber dem anregenden Licht zu niedrigeren Photonenenergien verschoben ist und somit als Lasermedium dient. Die Auswahl der genutzten Wellenlänge aus dem ansonsten breiten Emissionsspektrum des Farbstoffs geschieht mit einer Gitterkonstruktion, mit dessen Winkeleinstellung relativ zum einfallenden Lichtstrahl die gewünschte Wellenlänge vom Primärstrahl separiert werden kann. Eine exakte Beschreibung des Resonators und des Aufbaus bzw. der Funktion der genutzten Farbstofflaser wird in [142, 143] angegeben. Die wichtigsten Parameter der während des Experiments verwendeten Excimer- und Farbstofflaser finden sich zusammengefasst in

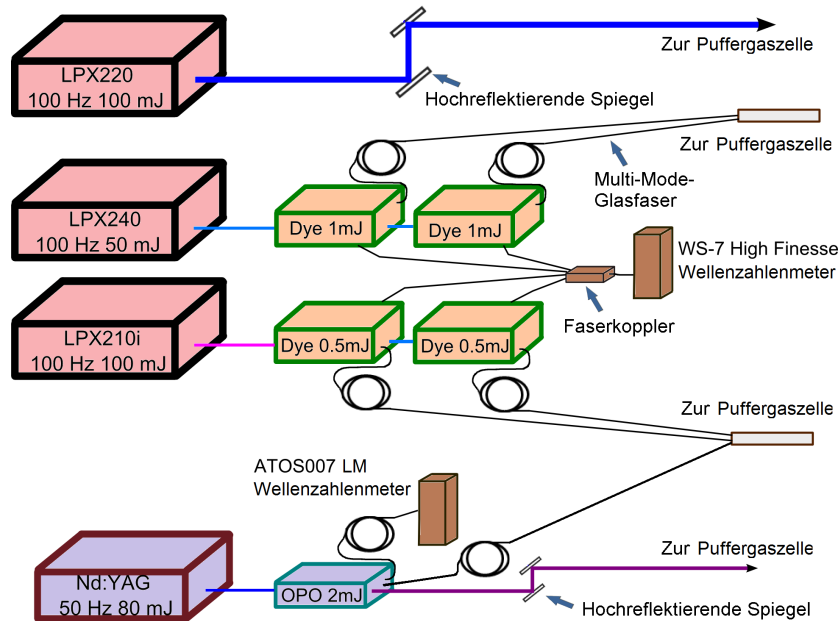


Abbildung 3.5: Schematisch werden hier die verwendeten Lasersysteme gezeigt. Jeweils zwei Farbstofflaser werden von einem Excimerlaser gepumpt, während der Nd:YAG Laser das OPO System betreibt. Ein weiterer Excimerlaser stellt UV-Licht (351nm) für den Ionisationsschritt zur Verfügung. Einkoppelt wird das Licht der Farbstofflaser über Multi-Mode-Glasfasern und des Excimerlasers über hochreflektierende Spiegelaufbauten. Für das OPO System standen beide Einkoppelmöglichkeiten zur Verfügung. Die Auslese der Wellenlänge wird über zwei UV- Wellenlängen Messgeräte, sogenannte Wellenzahlenmeter gewährleistet. Mehr Informationen dazu finden sich in Abschnitt 3.3.

Tabelle 3.2. Aufgrund der Vielzahl an Farbstoffen und möglichen Lösungsmittel kann mit Farbstofflasern ein breites Spektrum an Laserlicht zwischen 315 und 1800 nm [144] erzeugt werden. Dabei können Konversionseffizienzen von bis zu 30% erreicht werden [109]. Typischerweise resultiert die hohe Konversionseffizienz in Ausgangspulsenergien von bis zu 4 mJ/Puls. Die spektrale Bandbreite des emittierten Laserlichts liegt dabei speziell im UV-Nahen und im UV-Bereich in einer Größenordnung von  $\approx 5,5$  GHz.

Das abstimmbare Laserlicht der Farbstofflaser wird mit einer Quartzlinse der Brennweite  $f = 38$  mm in eine Multi-Mode-Glasfaser des (Leoni Typ AS600/630UVAN [145]) mit einem Kerndurchmesser von  $600 \mu\text{m}$  fokussiert. Der Transport und die Einkopplung in die Messapparatur werden in Kapitel 3.3.1 detailliert erklärt. Die Auslese der Wellenlänge wurde mit dem Wellenzahlenmeter WS7 der Firma HighFinesse [146] mit einer Auflösung von bis zu 60 MHz bei der Nutzung von Single-Mode Fasern im spektralen Bereich 320-1100 nm realisiert. Ferner wurde in jedem Farbstofflaser etwa 4% des Laserlichts nach der Fokuslinse mit

einer 1 mm dicken Quarzplatte ausgekoppelt und in einen Faserkoppler, der direkt mit der Faserkopplung des Wellenzahlenmeters verbunden ist, eingekoppelt.

Tabelle 3.2: Angegeben sind einige Eckdaten (Lasertyp, Gasfüllung, Pulsenergie und die Pulsdauer in FWHM) der verwendeten Excimerlaser und Farbstofflaser.

Lasertyp	Gasfüllung	Pulsenergie [mJ]	Pulsdauer [ns]
Excimerlaser LPX220	XenonFluorid (XeF)	0-200	18
Excimerlaser LPX210	KryptonFluorid (KrF)	0-120	18
Excimerlaser LPX240	XenonChlorid (XeCl)	0-50	18
Farbstofflaser	Variabel	0-2	18

### Nd:YAG Laser und OPO System

Neben den Excimerlasern wurde ein Nd:YAG Laser in Kombination mit einem Optical Parametric Oscillator (OPO) - System verwendet (vgl. Abbildung 3.5). Die maximale Leistung, die mit dem Nd:YAG Laser erreicht werden kann, beträgt für die fundamentale Laserstrahlung mit einer Wellenlänge von 1064 nm etwa  $P=50$  W, was einer Pulsenergie von 1 J bei einer Repitionsrate von 50 Hz entspricht. Die Pulslänge wurde zu 8 ns bestimmt. Die dritte Harmonische (THG) des Nd:YAG Lasers, einer Wellenlänge von 355 nm entsprechend, hat eine Pulsenergie von  $E_{\text{THG}} = 100$  mJ und wird zum Pumpen des OPO - System verwendet. Im Wesentlichen besteht das OPO-System aus zwei Bauteilen, der OPO-Einheit und der Frequenzverdopplungseinheit. Dabei werden durch die Verwendung eines nichtlinearen optischen Elementes, zum Beispiel eines Beta-Bariumborat (BBO) Kristalls, über eine Drei-Wellen-Wechselwirkung Laserstrahlen zweier Wellenlängen erzeugt, die Signal und Idler-Strahlung. Diese sind über den folgenden Zusammenhang an die Frequenz der Pumpstrahlung geknüpft.

$$f_{\text{Pump}} = f_{\text{Signal}} + f_{\text{Idler}} \quad (3.3)$$

Mit  $f_{\text{Pump}}$  der Frequenz des Pumpsstrahls,  $f_{\text{Signal}}$  der Frequenz der Signalstrahlung und

Tabelle 3.3: Aufgetragen sind der Betriebsmodus, das durchstimmbare Spektrum und die erreichbare Pulsenergien des OPO-Systems.

Betriebsmodus	Spektrum [nm]	Pulsintensität [ $\mu\text{J}/\text{Puls}$ ]
Frequenzverdopplung [SHG]	345 - 401	250
Frequenzmischung [SFM]	298 - 349	$\leq 4000$

$f_{\text{Idler}}$  als Frequenz der Idlerstrahlung. Durch das teilweise Rückkoppeln der Signal oder Idlerstrahlung durch den Kristall lässt sich eine Energieerhöhung der resonanten Welle erreichen. Weiterführende Literatur zum Thema OPO findet sich unter [147]. Betrieben werden kann das OPO-System in zwei verschiedenen Operationsmodi, der Frequenzverdopplung (SHG)

oder der Frequenzmischung (SFM), abhängig von dem gewünschten emittierten Frequenzspektrum. Das emittierte Wellenlängenspektrum und die typisch erreichbaren Pulsenergien werden in Tabelle 3.3 zusammengefasst. Das emittierte Licht des OPO-Systems hat eine Pulsbreite von etwa 8 ns. Mit Hilfe von beschichteten, plankonvexen Linsen mit der Brennweite  $f = 50$  mm wird das Laserlicht in eine Multi-Mode-Glasfaser fokussiert und zum Experiment transportiert. Da die Fasern nur begrenzt zum Transport von Laserlicht mit hoher Pulsenergie<sup>7</sup> geeignet sind, wurde alternativ ein Spiegelsystem aus beschichteten hochreflektierenden Spiegeln zum Transport des Laserlichts des OPO-System aufgebaut. Der Transport und die Einkopplung in die Messapparatur werden in Kapitel 3.3.1 detailliert erklärt.

Die Auslese der Wellenlänge des OPO-Systems geschieht über die Nutzung eines Wellenzahlenmeters der Marke **LM007** [148] der Firma ATOS. Hierbei wird ein Teil des Lichts des OPO-Kristalls aus einer Seitenöffnung des OPO-Systems ausgekoppelt und mit Hilfe einer Fokuslinse aus Quartz mit einer Brennweite von 50 mm in eine Multi-Mode-Glasfaser eingekoppelt, die direkt mit dem Wellenzahlenmeter verbunden ist.

### 3.3.1 Strahltransport und Einkopplung in die Messapparatur

In diesem Unterkapitel wird im Detail der Transport der Laserstrahlen von den Lasersystemen zur Messapparatur und deren Einkopplung beschrieben. Hierbei werden im Folgenden der Transport und die Einkopplung separat voneinander beschrieben.

#### Strahltransport

Um möglichst effizient das Laserlicht von den Lasersystemen zum Experimentierplatz zu transportieren, kamen für den ersten Anregungsschritt Multi-Mode-Glasfasern (vgl. Kapitel 3.3) zum Einsatz, die mit bis zu 50% Transmission im UV - Bereich eine effiziente Einkopplung des Laserlichts in die Puffergaszelle erlauben. Die Glasfasern sind hierfür auf eine Länge von 25 m geschnitten und durch Plastikrohre geschützt bis zu der Puffergaszelle gefädelt worden (vgl. Abbildung 3.5).

Der Strahlungstransport des UV Laserlichts für den 2ten Anregungsschritt erfolgt über dielektrisch beschichtete, hochreflektierende Spiegel mit einem Durchmesser von zwei Zoll mit einer Transmission von  $T = 99,7\%$  bei einer Wellenlänge von 351 nm. Insgesamt wurden sieben solcher Spiegel auf einer Strecke von 30 Metern verbaut und der Strahlengang aus Laserschutzgründen mit Plastikrohren verkleidet. Aufgrund der Divergenz des Excimerlaserlichts wurde eine UV-Linse mit einer Brennweite  $f = 10$  m direkt am Ausgang des LPX220 installiert, um einen möglichst effizienten Transport des Laserlichts zur Messapparatur zu ermöglichen. Zur Justage der Spiegel wurden elektrische Schrittmotoren installiert, die mit 9 V Signalen den Spiegel in horizontaler und vertikaler Achse verfahren können. Mit Hilfe des Spiegelsystems konnte eine Transmission von 40% erreicht werden.

<sup>7</sup>In diesem Falle liegt die Pulsenergie bei Werten um bis zu 4 mJ/Puls.



### Einkopplung in die Messapparatur

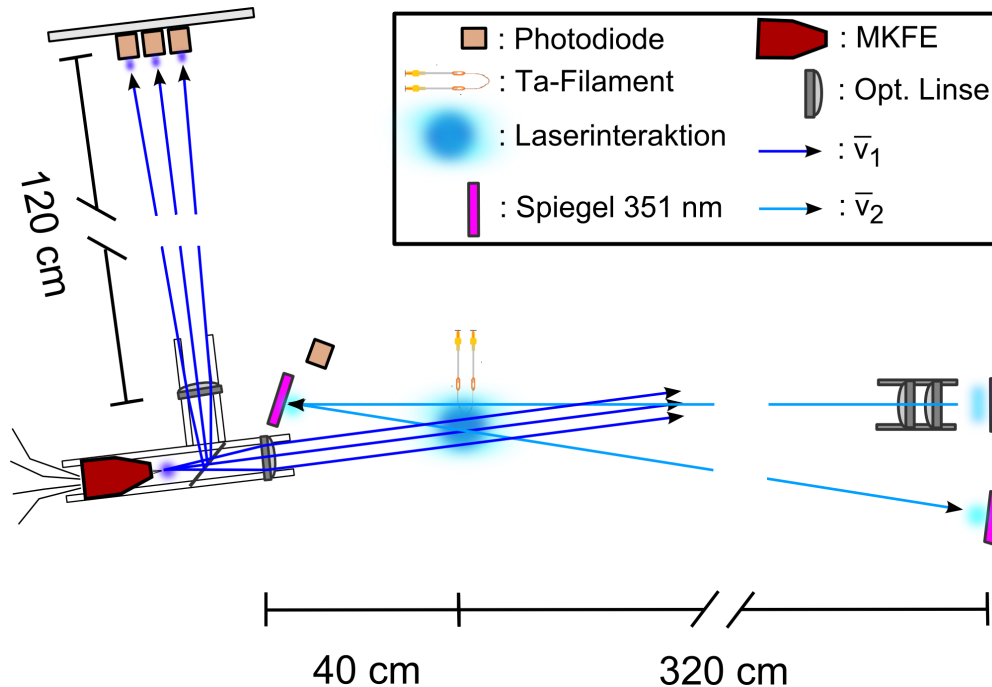


Abbildung 3.6: Schematische Darstellung der Einkopplung des Lichtes aus der Glasfaser und UV-Lichtes für den zweiten nichtresonanten Schritt in die Puffergaszelle. Die Optiken sind ausserhalb um die Puffergaszelle angebracht, währenddessen der Ort des Überlapps durch das Filament innerhalb der Puffergaszelle angedeutet wird. Eine detaillierte Beschreibung des Aufbaus findet sich im Text.

Aufgrund der Nutzung von vier Farbstofflasern und eines OPO-Systems zur Bereitstellung des ersten Anregungsschritts wurde eine Konstruktion benötigt, die die Montage mehrerer Glasfasern ermöglicht und gleichzeitig einen maximalen Überlapp der einzelnen Laserstrahlen zueinander und zum Ionisationslaserstrahl am Ort der Interaktion mit der Atomwolke erlaubt.

Aus diesem Grund wurden zwei zylindrisch geformte **Multifaserkuppelheiten** (MFKE) mit jeweils einer Gesamtlänge von 93 mm konstruiert. Um den genannten Anforderungen gerecht zu werden, besitzen die MFKE sechs bzw. vier erodierte Fasertunnel mit einem Öffnungswinkel von  $2,5^\circ$  bzw.  $1,5^\circ$  zur horizontalen Strahlachse. Durch den gewählten Abstand der Öffnungen zur Strahlachse treffen sich die Faserenden in einem Abstand von 10 mm zur Öffnung der MFKE aufeinandertreffen. Zur Einkopplung des Laserlichts aus der Glasfaser in die Puffergaszelle, wie sie in Abbildung 3.6 schematisch dargestellt ist, wurde eine Haltekonstruktion aus optischen Bauteilen [149] vorgesehen, mit denen eine Justage der MFKE in der Mitte der optischen Achse möglich ist. Als Fokussierlinse wurde eine zwei Zoll

Sammellinse mit einer Brennweite von 75 mm gewählt [150]. Mit dem System aus MFKE und der Sammellinse wurde am Ort des Filaments in 40 cm Entfernung zur MFKE ein Gesamtüberlapp aller Laserstrahlen von bis zu 90% bestimmt. Hierbei handelt es sich nach der Fokusslinse um parallele Strahlen mit einem Durchmesser von 30 mm.

Zur Diagnose und zeitlichen Synchronisation der Laser (vgl Kapitel 3.3.2) wird ein kleiner Teil des Laserlichts mit einer 1 mm dicken und um  $45^\circ$  zur vertikalen Achse gedrehten rechteckigen Quarzplatte ausgekoppelt und mit einer Sammellinse der Brennweite 50 mm auf eine Anordnung von Photodioden in einer Entfernung von 1,30 m fokussiert, wodurch aufgrund der bestehenden Divergenz der unterschiedlichen Laserstrahlen eine räumliche Trennung der Bildpunkte für jede einzelne Faser erreicht wird. Nach Erfassen der Photodiodesignale konnten so die zeitlichen Unterschiede der Laser zueinander gemessen werden. Dargestellt wird die Einkopplung in die Puffergaszelle mit der Photodiodenanordnung in Abbildung 3.6. Die Einkopplung des zweiten nichtresonanten Schritts in die Puffergaszelle wurde durch die Nutzung eines zylindrischen Teleskops realisiert, welches das rechteckige Strahlprofil des Excimerlasers in ein elliptisches Strahlprofil mit einer Gesamtfläche von  $875 \text{ mm}^2$  konvertiert. Nach Passieren der Puffergaszelle wurde der Laserstrahl mit Hilfe eines rechteckigen HR-Spiegels für 351 nm ein weiteres Mal, jedoch leicht versetzt erneut in die Puffergaszelle eingeschossen. Als Folge dessen wird das ausgeleuchtete Volumen der Puffergaszelle erhöht. Ein weiterer zwei Zoll hochreflektierender Spiegel in einem Abstand von 3 m zu Puffergaszelle sorgt für eine erneute Reflektion des Laserlichts, sodass der Laserstrahl insgesamt vier Mal die Puffergaszelle durchquert. Schematisch gezeigt wird dies in Grafik 3.6.

### 3.3.2 Zeitliche Synchronisation der Laserpulse

Für effizientes RIS ist es wichtig, dass die Laserstrahlen im Interaktionsvolumen zueinander zeitlich überlappen. Die Triggerung der Excimerlaser gepumpten Farbstofflaser sowie des YAG-gepumpten OPO-Systems wird daher durch einen digitalen 8-Kanal Pulsgenerator der Firma Quantum (Modell 9510) [151, 152] übernommen, der sich mit einer Genauigkeit von 1,5 ns bei einem Jitter von 50 ps auszeichnet<sup>8</sup>. Der Pulsgenerator wird dabei als Ausgangspunkt der Ansteuerungskette verwendet und steuert drei aktive Synchronisationseinheiten der Firma Lambda Physik (Modell: LPA92) an, welche dann wiederum die Excimerlaser ansteuern. Ein weiteres wichtiges Glied in diesem Messprozess sind zwei Photodioden, in die ein kleiner Teil des Lichts der Excimerlaser LPX210i und LPX220 eingekoppelt wird. Das auf diese Weise produzierte Signal wird geteilt, auf einem Oszilloskop mit einem Referenzsignal des Pulsgenerators für Diagnosezwecke dargestellt und als Rückkopplung an die LPA 92-Module, die zur Steuerung des LPX210i und LPX220 vorgesehen sind, geschickt. Innerhalb dieses Moduls findet dann ein Abgleich zwischen dem Signal des Pulsgenerators und des Rückkopplungssignals statt, sodass der eingestellte Gangunterschied zwischen den einzelnen Excimerlaser trotz möglicher Schwankungen durch Temperatureffekte des Thyratrons gleich bleibt.

<sup>8</sup>Dieser ist im Vergleich mit dem Jitter der Excimerlaser, welcher mit der Verwendung eines neuen Thyratrons bei 10 ns liegt, vernachlässigbar klein

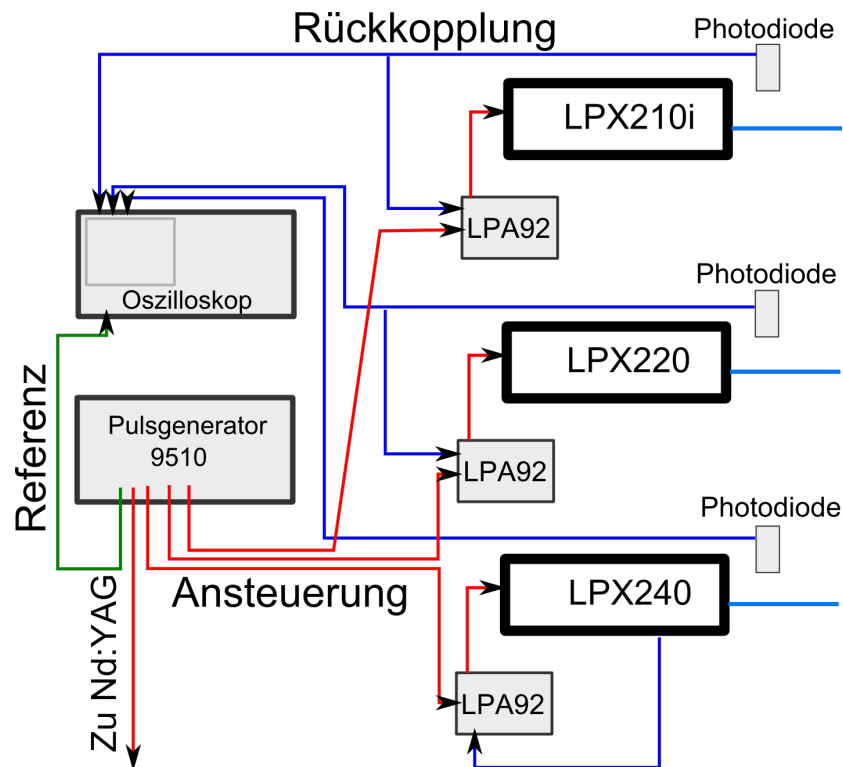


Abbildung 3.7: Schematischer Aufbau der zeitlichen Lasersynchronisation. Die Einstellung der gewünschten Verzögerungszeit wird von einem Frequenzgenerator sichergestellt und permanent mit Fotodioden am Excimerlaser und zusätzlich an der Messapparatur überwacht. Nicht gezeigt in diesem Bild ist die Auslese der Photodioden an der Puffergaszelle. Die Signalwege sind dabei durch Linien dargestellt und unterteilt in Diagnose (blau), Ansteuerung (rot) und Referenz für das Oszilloskop (grün). Befinden sich die Laser nicht mehr in Koinzidenz, kann der Anwender durch Manipulation der Verzögerungszeit mit Hilfe des Pulsgenerators eine erneute Synchronisation der Laser zueinander herstellen. Die LPA92 Synchronisationseinheiten ermöglichen beim Langzeitbetrieb eine sehr schnelle und automatisierte Synchronisation der Laserpulse zueinander.

Für den LPX240 verläuft die zuletztgenannte Prozedur vergleichbar ab, lediglich das Rückkopplungssignal wird direkt über eine im Laser verbaute Photodiode ausgelesen. Grafisch ist dies in Abbildung 3.7 gezeigt.

Die Messung der zeitlichen Gangunterschiede an der Puffergaszelle wurde über Photodioden im Zusammenhang mit einem dig. Oszilloskop realisiert, wobei sowohl die Photodioden als auch das Oszilloskop an der optischen Zelle installiert sind (vgl. Abbildung 3.6). Zu Beginn werden die Signale der Photodioden im Inneren des Laserlabors und an der Puf-

fergaszelle zeitlich abgeglichen und die Excimerlaser soweit verzögert, dass alle Laser an der Pufferfergaszelle koinzidieren.

### 3.4 Experimentsteuerung

Aufgrund der Vielzahl an Geräten und simultan zur Messung ablaufenden Prozesse und der daraus entstehenden großen Datenmengen wurde ein System aus mehreren, über ein TCP/IP Netzwerk miteinander kommunizierender Windows-PCs aufgebaut. Dabei wurden Prozesse, die einem bestimmten Gerätetypen (Lasersysteme, Messapparatur, Datenaufnahme etc.) zugeordnet werden können, voneinander separiert und mit Hilfe einer Reihe von Programmen, die in der Entwicklungsumgebung LabView geschrieben wurden [135], gesteuert.

Insgesamt befinden sich sieben Arbeitsrechner im Einsatz, die im Folgenden beschrieben werden

Wie aus Grafik 3.8 hervorgeht, werden zwei der Computer **Laser** zur Steuerung von jeweils zwei Farbstofflasern und der Auslese der Laserpulsenergie benötigt. Die Kommunikation wird dabei über zwei ebenfalls auf LabView basierenden Programmen [135] mit jeweils einer GBIB und RS232-Schnittstelle ermöglicht. Die Farbstofflaser können sowohl im **Standalone**-Modus autark oder aber im **Netzwerk**-Modus, bei dem synchronisiert zur Datenaufnahme eine einzelne Wellenzahl auf Zeit oder aber ein Wellenzahlenscan mit fester Messzeit gemessen werden kann, betrieben werden.

Die Auslese der Pulsenergie der Farbstofflaser wird ebenfalls über ein LabView-Programm [135] über eine PXI-Schnittstelle überwacht. Hierbei werden die Spannungssignale der entsprechenden Photodioden ausgelesen und in die korrespondierende Pulsenergie umgewandelt und abgespeichert.

Neben dem in Kapitel 3.2.4 verwendeten Messrechner **DAQ** mit DAQ-Modul zur Auslese der Detektorsignale wird zur Kontrolle der Elektrodenpotentiale, des Drahtheizstroms und Strahlpulsung ein Computer **Trigger** und ein weiteres PXI-7833-R Modul (**Steuerung**) benutzt. Zur Ansteuerung und Kontrolle der Hochspannungsmodule wird jeweils ein Analog Ausgang des Steuerungsmoduls verwendet. Das Signal mit einem Wert zwischen 0 und 10 V wird innerhalb der Hochspannungsmodule verarbeitet. Es wird dann eine korrespondierende Hochspannung erzeugt, welche dann durch SHV Verbindungskabel an die jeweiligen Elektroden weitergegeben wird (vgl. Tabelle 3.1). Die jeweilige anliegende Spannung wird zu Diagnosezwecken über analoge Schnittstellen der FUG Module und mit Hilfe eines LabView-Programms [135] in Echtzeit erfasst und grafisch dargestellt. Der Drahtheizstrom wird ebenfalls über einen analogen Ausgang gesteuert. Auch hier werden 0-10 V Signale verwendet, damit innerhalb des Netzgerätes dann der dem Ansteuerungssignal entsprechende Stromwert an den Tantaldraht weitergegeben werden kann. Die Strahlstückelung zur Realisierung des in Abschnitt 2.5.4 beschriebenen Messzykluses wird mit Hilfe eines Strahlblockers innerhalb der SHIP Vakuumkammer ermöglicht. Ausgehend von einem analogen Ausgang des Steuerungsmoduls werden jeweils zwei Zustandsinformationen in Form von

5 V Signalen gesendet, wodurch der Motor, an dem die Strahlblende befestigt ist, in den Strahl und aus dem Strahl heraus geschoben wird. Die Zeit in der der Strahl geblockt ist dabei abhängig vom Messzyklus (vgl. Abbildung 2.10). Zur Synchronisierung existiert zusätzlich zu der Verbindung über die Computer eine direkte Verbindung zwischen den beiden PXI-7833 R Modulen über eine TTL-Schnittstelle.

Ein weiterer Computer **Messapparatur** wurde dediziert zur Auslese und Kontrolle der Messapparaturenparameter eingeteilt. Zu diesen Parametern zählen neben der Kontrolle der Getter-Pumpe über eine RS232-Schnittstelle und der Temperatur der einzelnen Sektionen während eines Ausheizvorgangs auch die Kontrolle und Überwachung des Gasdrucks innerhalb der Messapparatur während des Experimentierbetriebs. Gesteuert wird der Gasdruck mit Hilfe eines auf LabView basierenden Kontrollprogramms [135], welches neben der Wahl des passenden Gasflusses auch die Möglichkeit zur Einstellung eines maximalen Druckwertes, der nicht überschritten werden kann, erlaubt. Zu den weiteren Observablen der Messapparatur zählt schliesslich noch die Kontrolle des RGA und die Auslese des Pyrometers, welches die Drahttemperatur in einem Bereich von 600 bis 3000 °C mit einer Abtastungszeit von 5 ms in Echtzeit wiedergeben kann. Für die Auslese des Pyrometer wird das firmeneigene Ausleseprogramm **Infracore** der Firma Lumasense [153] genutzt.

Der Computer **Wavemeter** wurde speziell zur Kommunikation mit dem Wellenzahlenmeter WS7 zur Verfügung gestellt. Die Verbindung wird dabei über eine USB-Schnittstelle hergestellt. Die Daten wurden mit einer Software von HighFinesse ausgelesen und gespeichert. Dabei ist es möglich, alle Farbstofflaser in Echtzeit auszulesen und deren aktuelle Wellenzahl genau darzustellen.

Der letzte Computer **OPO** wird zur Auslese des Wellenzahlenmeters LM 007 über eine USB-Schnittstelle und zur Kontrolle des OPO-Systems über eine RS232-Schnittstelle verwendet. Das firmeneigene Kontrollprogramm bietet dabei die Möglichkeit der Wahl der Betriebsmodi (SHG und SFM, vgl. dazu Kapitel 3.3) und erlaubt die Frequenzänderung des ausgestrahlten Laserlichts.

Neben den nötigen Computern kam eine Vielzahl von einzelnen, den spezifischen Anforderungen entsprechende Programme mit der Entwicklungsumgebung LabView geschrieben zum Einsatz. Diese werden im Detail in [135] beschrieben werden und daher wird an dieser Stelle lediglich zusammenfassend auf das Programm der Datenauslese eingegangen. Das Datenaufnahmeprogramm [135] stellt den Mittelpunkt der Experimentsteuerung dar. Zum Einen werden hier die einzelnen Messungen gestartet, wobei das Programm neben der Möglichkeit, die Aktivität auf dem PIPS-Detektor für eine bestimmte Messzeit  $t_{mess}$  aufzunehmen, die Option bietet, mit den Farbstofflasern synchronisierte Wellenzahlenscans durchzuführen. Hierfür wird eine Verbindung zu den Messprogrammen [135] der Farbstofflaser, die ebenfalls auf der Entwicklungsumgebung LabView basieren, aufgebaut und deren aktuelle Wellenzahlposition abgefragt. Tritt während einer bestimmten Wellenzahl ein Alphazerfall auf, so wird dieser automatisch der betreffenden Wellenzahl zugeordnet und in

einer Messdatei abgespeichert. Zum Anderen handelt es sich um den Knotenpunkt der Datenaufnahme, da mit dem Start einer neuen Messung sämtliche relevanten Auslesedaten wie beispielsweise Wellenzahl und Laserpulsenergie der Scanlaser, Drahttemperatur, Druck innerhalb der Messapparatur, der Degradierkammer und der RGA-Sektion, Strahlstrom und die Gesamtmesszeit plus jeweilige Zykluszeit in Sekunden gespeichert werden.

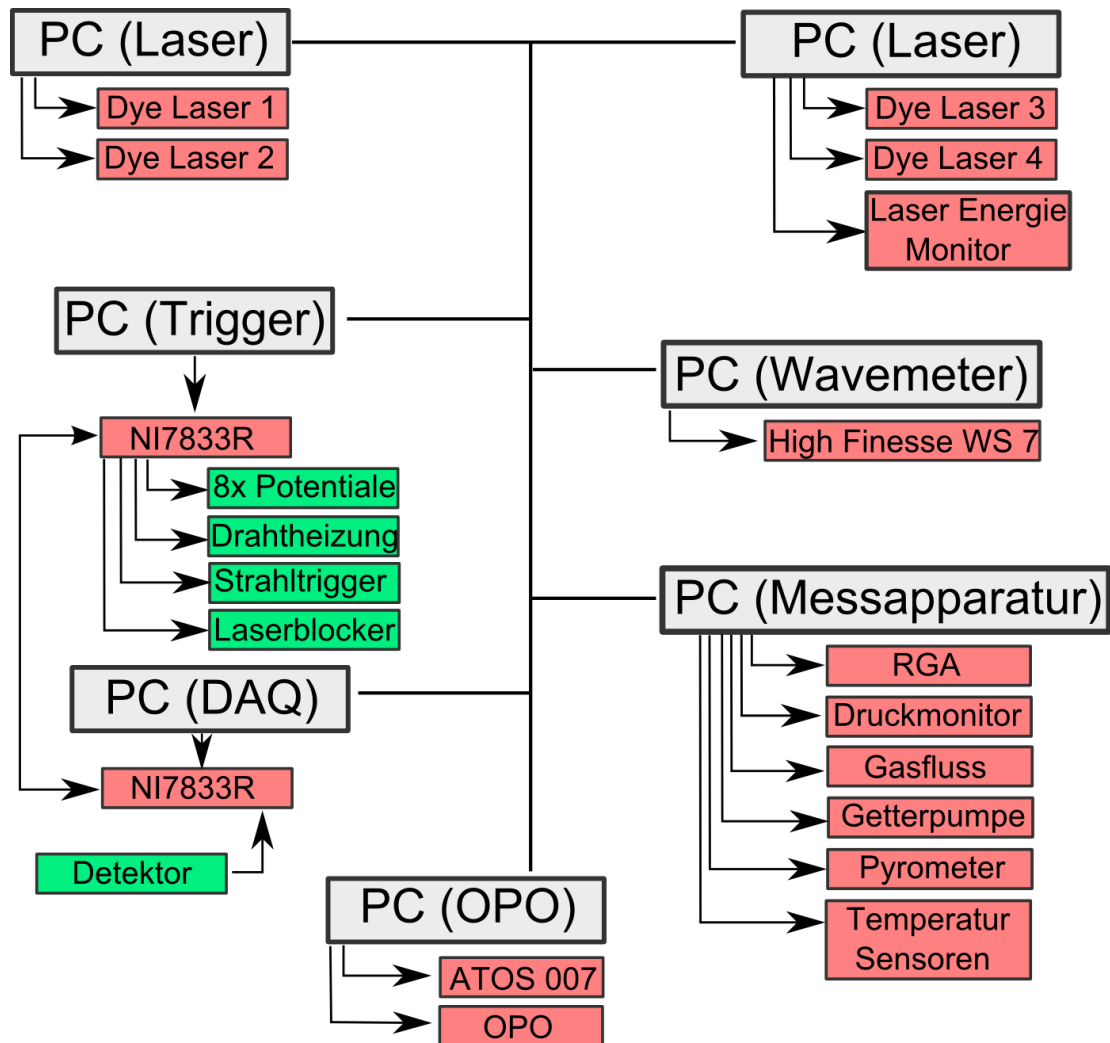


Abbildung 3.8: Schematische Darstellung der Experimentsteuerung. Eine Auflistung aller Aufgaben findet hierbei separiert nach den Computern (PCs) statt. Untereinander kommunizieren die PCs über das Netzwerkprotokoll TCP/IP. Eine detaillierte Beschreibung der einzelnen Computer findet sich im Text.

## Kapitel 4

# Optimierungen der experimentellen Parameter der RADRIS Methode

Die Optimierungen der RADRIS Methode wurden unter dem Standpunkt der Effizienzmaximierung für die nachfolgenden on-line Experimente an Nobelium durchgeführt. Am Anfang werden dazu in Kapitel 4.1 Simulationen vorgestellt, die einen Einblick in die Kinematik der Fusionsprodukte und den Transport der gestoppten Ionen auf den Filamentdraht geben. Anschliessend werden in Abschnitt 4.2 auf Basis der Halbwertszeit des gewünschten Isotops die Spezifikationen der optimalen Messzyklen für on-line Experimente angegeben. In Abschnitt 4.3 werden weitere Optimierungen on-line mit Hilfe des radioaktiven Ytterbiumisotops  $^{155}\text{Yb}$  beschrieben. Einen Teil der hier präsentierten Simulationen und Messergebnisse werden in gekürzter Form in [154] zusätzlich veröffentlicht.

### 4.1 Simulationen

Ein bewährtes Konzept zur Vereinfachung komplexer Sachverhalte greift auf die Verwendung von computergestützten Simulationen zurück. Wie aus der Beschreibung der experimentellen Methode ersichtlich ist (vgl. Kapitel 2.5.4), macht es die Komplexität der RADRIS-Methode zwingend erforderlich, kritische Parameter wie die Stopp- und Sammeleffizienz der Fusionsprodukte innerhalb der Messapparatur zu optimieren. Dazu wurden SRIM/TRIM [155] Simulationen zum Abstoppverhalten der Rückstoßkerne innerhalb der Puffergaszelle bei Anwesenheit eines Puffergases durchgeführt mit dem Ziel, geeignete Dicken und Materialien für Abbremsfolien für die spätere experimentelle Optimierung zu finden. Mit Hilfe der Software SIMION [156] zur Simulation von Iontrajektorien in elektrischen Feldern wurde das Verhalten von gestoppten Ionen innerhalb der Puffergaszelle mit den aus Tabelle 3.1 angegebenen Werten studiert.

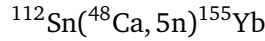
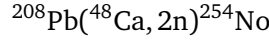
#### 4.1.1 Abschätzung der Stoppverteilung der Fusionsprodukte innerhalb der Puffergaszelle

Die Eindringtiefe der Rückstosskerne wird im Wesentlichen durch das Wechselspiel der verfügbaren Abbremsfolien, der Dicke der Folie auf dem Eintrittsfenster und des Puffergasdruckes innerhalb der Puffergaszelle in Abhängigkeit der kinetischen Energie der Rückstosskerne bestimmt. Für die experimentelle Methode ist es wichtig, dass die Position der gestoppten



Fusionsprodukte innerhalb der Puffergaszelle einen möglichst verlustfreien Transport dieser Produkte auf dem dünnen Tantaldraht erlaubt (siehe Abbildung 2.9). Die Rückstossenergie der Ionen wird mit Hilfe des Programms LISE++ [157] berechnet, welches die Betrachtung der kinematischen Prozesse von Fusionsreaktionen erlaubt.

Betrachtet werden im Folgenden die Fusionsreaktionen zur Erzeugung des Nobeliumisotops  $^{254}\text{No}$  und des Ytterbiumisotops  $^{155}\text{Yb}$ , die beide einen  $^{48}\text{Ca}$  - Partikelstrahl benötigen.



Mit einer kinetischen Energie des  $^{48}\text{Ca}$  - Partikelstrahls von  $E_{\text{Lab}} = 218,4 \text{ MeV}$  ergibt sich somit nach dem Verlassen des Pb ( $469 \frac{\mu\text{g}}{\text{cm}^2}$ ) bzw. Sn ( $350 \frac{\mu\text{g}}{\text{cm}^2}$ ) Targets eine Rückstoßenergie von

$$E_{^{254}\text{No}} = (40,1 \pm 2,1) \text{ MeV} \quad (4.1)$$

$$E_{^{155}\text{Yb}} = (67,6 \pm 3,4) \text{ MeV} \quad (4.2)$$

Die Position der gestoppten Fusionsprodukte wurde mit denen im Experiment in den Abschnitten (Abschnitt 4.3.1 und 5.2.1) verwendeten Randbedingungen wie der Dicke der Abbremsfolien und des verwendeten Puffergasdrucks mit Hilfe des Programms SRIM extrahiert. Zu bemerken ist allerdings, dass die Zahl der verfügbaren Dicken an Abbremsfolien zur Optimierung an  $^{254}\text{No}$  und nicht für  $^{155}\text{Yb}$  gewählt wurden. Durchgeführt wurden die Simulationen im Fall von  $^{254}\text{No}$  mit einer Abbremsfolienkonfiguration von  $1,5 \mu\text{m}$  Mylar als Abbremsfolie und  $3,5 \mu\text{m}$  Mylar auf dem Eintrittsfenster bei einem Puffergasdruck von 95 mbar und bei  $^{155}\text{Yb}$  mit einer Abbremsfolienkonfiguration von  $1,5 \mu\text{m} + 3 \mu\text{m}$  als Abbremsfolien und  $3,5 \mu\text{m}$  Mylar auf dem Eintrittsfenster bei einem Puffergasdruck von 85 mbar. Jeweils 500  $^{254}\text{No}$ - und  $^{155}\text{Yb}$ -Ionen wurden mit den oben genannten Energieverteilungen verwendet. Die Breite der Verteilungen der  $^{155}\text{Yb}$ - und  $^{254}\text{No}$ -Ionen wurde mit dem 16 Si-Streifendetektor in der Fokalebene von SHIP experimentell bestimmt (Informationen zu dem Streifendetektor finden sich in Abschnitt 3.1) und in den SRIM Rechnungen eingegeben. Daraus ergaben sich die Startbedingung für die Fusionsprodukte, mit einer 2D gaussförmigen Verteilung der  $^{254}\text{No}$ -Ionen zu  $\sigma_x^{\text{No}} = 21,9 \text{ mm}$  und  $\sigma_y^{\text{No}} = 5,7 \text{ mm}$ , und der  $^{155}\text{Yb}$ -Ionen zu  $\sigma_x^{\text{Yb}} = 43,6 \text{ mm}$  und  $\sigma_y^{\text{Yb}} = 11,1 \text{ mm}$  mit einem Raster<sup>9</sup> von  $\Delta x = 5 \text{ mm}$ . Exemplarisch für die Ergebnisse der SRIM-Simulationen mit Ytterbium und Nobelium wird in Abbildung 4.1 eine dreidimensionale Stopverteilung und ein entsprechender vertikaler Schnitt in Abbildung 4.2 von  $^{254}\text{No}$  gezeigt. Die Ionenreichweite, im Folgenden innerhalb der z-Ebene definiert, vom Eintrittsfenster aus gesehen im Puffergas wurde für  $^{254}\text{No}$  zu

$$z(^{254}\text{No}) = (6,0 \pm 1,6) \text{ cm} \quad (4.3)$$

<sup>9</sup>Der spezifische Wert 5 mm wurde gewählt, da dies der Breite eines einzelnen Si-Streifens des SHIP-Detektors entspricht.

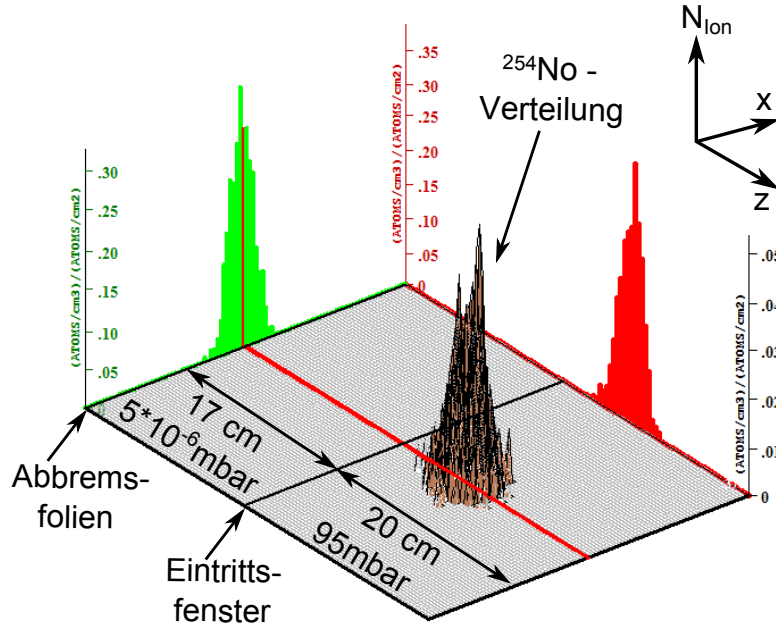


Abbildung 4.1: Eindringtiefe der  $^{254}\text{No}$ -Ionen. Insgesamt wurden 500  $^{254}\text{No}$ -Ionen mit einer 2D-Gaussverteilung als Anfangsbedingung genommen. Die kinetische Energie der  $^{254}\text{No}$ -Ionen betrug 40 MeV mit einer Energieverteilung von  $\pm 5\%$ . Als Abbremsfolie wurde eine  $1,5 \mu\text{m}$  dicke Mylarfolie in 15 cm Entfernung zusätzlich zur Eintrittsfensterfolie mit einer Dicke von  $3,5 \mu\text{m}$  Mylar eingebaut. Der Puffergasdruck wurde mit 95 mbar Argon in SRIM eingestellt.

und für  $^{155}\text{Yb}$  zu

$$z(^{155}\text{Yb}) = (9,3 \pm 2,2) \text{ cm} \quad (4.4)$$

bestimmt.

Das Eintrittsfenster ragt 3 cm in das Volumen der Puffergaszelle hinein und ist 7 cm von der geometrischen Mitte der Puffergaszelle entfernt. Laut Gleichung 4.3 ist die Verteilung der  $^{254}\text{No}$ -Ionen daher 1 cm vor der geometrischen Mitte der Puffergaszelle lokalisiert, was einer Entfernung von etwa 3 cm zum Tantaldraht entspricht. Für  $^{155}\text{Yb}$  ergibt sich eine Position der Innenverteilung, die 2,3 cm hinter dem geometrischen Mittelpunkt der Puffergaszelle liegt und auf gleicher Höhe mit dem Filamentdraht ist.

Während also für Nobelium alle Ionen vor dem Tantaldraht gestoppt werden und keine Verluste durch Kollisionen mit dem Tantalfilament zu erwarten sind, die Effizienz beim Abstoppen also  $\epsilon_{\text{Stop-No}} \approx 1$  ist, werden ein Teil der  $^{155}\text{Yb}$ -Ionen auf dem Tantalfilament und den Halterungen gestoppt, sodass lediglich  $\epsilon_{\text{Stop-Yb}} = 0,95$  für die weiteren Rechenschritte zur Verfügung stehen.

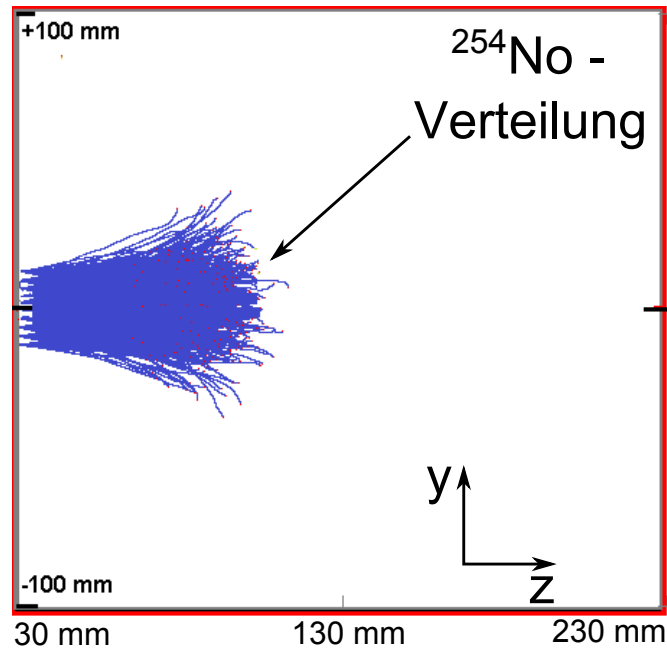


Abbildung 4.2: Zu Abbildung 4.1 korrespondierender vertikaler Querschnitt der  $^{254}\text{No}$ -Ionen in der Puffergaszelle, beginnend an der Oberfläche der Eintrittsfensterfolie (30 mm innerhalb der Puffergaszelle). Nicht in diesem Bild gezeigt sind die Abbremsfolien und die Flugstrecke zwischen den Abbremsfolien und dem Eintrittsfenster.

#### 4.1.2 SimION Simulationen mit der RADRIS Puffergaszelle

Im nächsten Schritt wurde mit Hilfe der ionenoptischen Simulationssoftware SIMION8.0 die Sammeffizienz der Ionen auf den Filamentdraht optimiert. Dafür wurden die Ionen mit den Massen 254u und 155u mit einer 3D-Gaussverteilung mit  $\sigma_x^{\text{No}} = 14,8 \text{ mm}$ ,  $\sigma_y^{\text{No}} = 8,4 \text{ mm}$  und  $\sigma_z^{\text{No}} = 16 \text{ mm}$  bzw.  $\sigma_x^{\text{Yb}} = 18,6 \text{ mm}$ ,  $\sigma_y^{\text{Yb}} = 13,2 \text{ mm}$  und  $\sigma_z^{\text{Yb}} = 22 \text{ mm}$  simuliert. Als Mittelpunkte der Ionenverteilungen wurde der jeweilige Wert aus den Gleichungen 4.3 und 4.4 herangezogen. Die Elektroden wurden in SimION mit der **Potentialkonfiguration Tantaldraht** aus Tabelle 3.1 beschaltet und im Fall von Nobelium wurde ein Puffergasdruck von 95 mbar und bei Ytterbium mit 85 mbar simuliert. Da mit SIMION8.0 kein Puffergas auf direktem Wege implementiert werden kann, wurde die Puffergasatmosphäre mit einer manuellen Simulationsroutine eingefügt. Das Prinzip ist das viskose Dämpfungsmodell und basiert auf dem Stokeschen Gesetz [158]. Die Befehlsroutinen werden detailliert in [159] beschrieben und mit Hilfe einer Lua-Befehlsdatei implementiert. Durchgeführt wurden die Simulationen mit einer reduzierten Ionenmobilität  $K_0$  für Ytterbium von  $1.837 \frac{\text{cm}^2}{\text{V}\cdot\text{s}}$ , entnommen aus [159]. Für Nobelium wurde eine reduzierte Ionenmobilität von  $1.9 \frac{\text{cm}^2}{\text{V}\cdot\text{s}}$  angenommen.

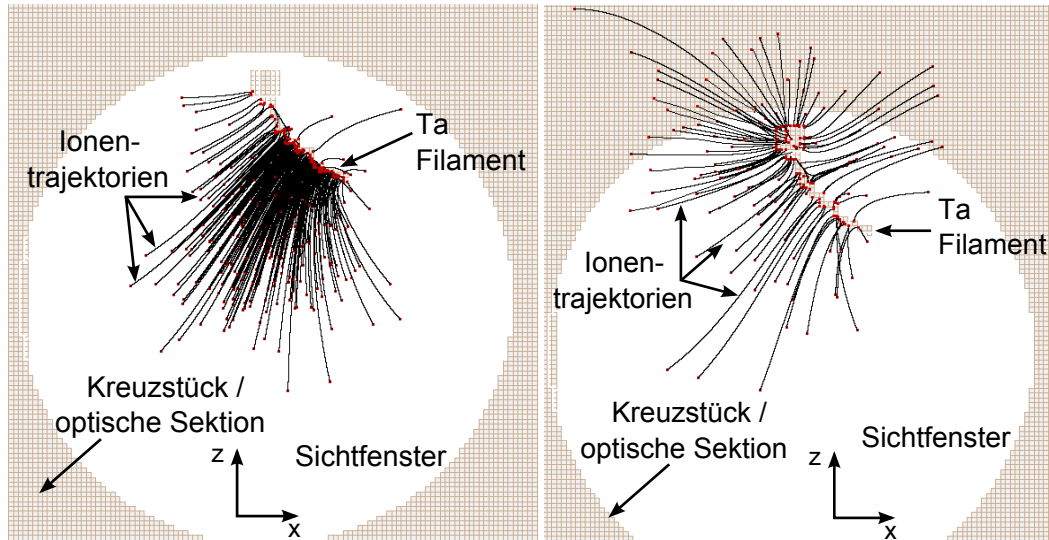


Abbildung 4.3: SIMION-Simulation mit der Potentialkonfiguration Tantalendraht aus Tabelle 3.1 für das Aufsammeln der Ionen auf den Tantalendraht, ausgehend von Nobelium (a) bei 95 mbar und Ytterbium (b) bei 85 mbar. Abgebildet ist ein xz-Schnitt, so dass man von oben auf das Geschehen schaut. Die roten Punkte entsprechend dabei dem Anfang- und Endpunkt der Ionen-trajektorien, die durch die schwarz durchgezogenen Linien dargestellt werden. Bei der runden Öffnung handelt es sich um ein Sichtfenster im Kreuzstück.

Aus den Simulationen ist zu erkennen, dass die Fokussierung der Ionen auf den Tantalendraht im Fall von Nobelium (siehe Abbildung 4.3(a)) weitaus effektiver gelingt als dies der Fall für Ytterbium (siehe Abbildung 4.3(b)) ist. Dies liegt daran, dass Nobelium vor dem Filamentdraht gestoppt wird, während das Stoppvolumen für Ytterbiumionen den Mittelpunkt auf gleicher Höhe des Filaments hat. Es wird also nur ein Teil der Ytterbium Ionen auf den vorderen Teil des Filament effizient aufgesammelt. Quantitativ sind  $\epsilon_{\text{Sammel-No}} = 88 \%$  der Nobelium Ionen auf eine Fläche entsprechend den vorderen 2/3 Teil des Filamentdrahts geführt worden, bei der ein effizientes Abdampfen der zuvor gesammelten Ionen angenommen wird. Im Falle von Ytterbium werden lediglich  $\epsilon_{\text{Sammel-Yb}} = 37 \%$  der Ionen in diesem Bereich registriert.

Neben dem Aufsammeln der Ionen auf den Tantalendraht wurde der direkte Transport der gestoppten Ionen auf den PIPS-Detektor simuliert. Die Randbedingungen haben sich bis auf die Elektrodenpotentiale, die nun mit den Werten der in Tabelle 3.1 markierten **Potentialkonfiguration Detektor** beschaltet wurden, im Vergleich zur vorherigen Messung nicht verändert. Beispielhaft wird in Abbildung 4.4 der direkte Transport in der Puffergaszelle ge-

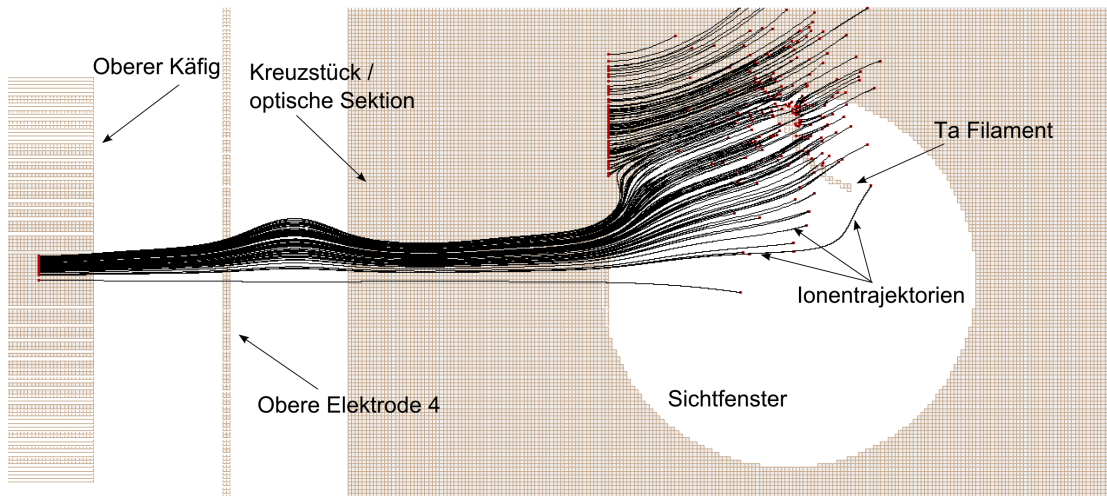


Abbildung 4.4: SimION Simulation des direkten Transports mit der Potentialkonfiguration Detektor aus Tabelle 3.1 von Ytterbium Ionen auf den oberen PIPS Detektor. Zu sehen sind die Ionentrajektorien (markiert als durchgezogene, schwarze Linie) und den Start- bzw. Endpunkt der Ionen, welche durch ein rotes Quadrat dargestellt werden. Bei der hier gezeigten Darstellung handelt es sich um einen Querschnitt der Puffergaszelle in der xz-Ebene.

stoppter Ytterbium-Ionen gezeigt. Auch hier gibt es markante Unterschiede in der Effizienz des Transports der Ionen auf den Detektor. Während im Fall von Nobelium aufgrund der günstigen Abstopposition und den optimierten elektrischen Feldern nahezu keinerlei Verluste im Transport auf den Detektor auftreten (wird hier nicht gezeigt), kommt es bei Ytterbium jedoch aufgrund einer schlechten Stopposition und nicht optimierten elektrischen Feldern zu erheblichen Verlusten durch Kollisionen der Ionen mit den Elektrodenwänden und dem Filamentdraht.

Quantitativ in Zahlen gefasst wurde für Ytterbium beim direkten Abtransport der Ionen auf den Detektor eine Effizienz von  $\epsilon_{\text{Trans-Yb}} = 43 \%$  bestimmt, während diese für Nobelium bei  $\epsilon_{\text{Trans-No}} = 100 \%$  liegt.

## 4.2 Messzyklus fuer Ytterbium und Nobelium

Aufgrund der Unterschiede in den Lebensdauern der Ytterbium und Nobelium Isotope wurde ein auf der Programmiersprache Labview basiertes Programm zur Berechnung der optimalen Gesamtzykluszeiten verwendet, welches von M. Laatiaoui [160] erstellt und in [161] detailliert beschrieben wird. Bei der Berechnung der optimalen Zykluszeit wird die Halbwertszeit des zu untersuchenden Isotops mit der Zeit verknüpft, die zur Durchführung von RADRIS-Messungen notwendig ist (eine detaillierte Erklärung des Messzyklus ist in Kapitel 2.5.4 angegeben). Die Gesamtzykluszeit setzt sich aus der Zeit für die RIS-Messungen und aus einer vorherigen Sammelzeit, bei der die Ionen auf den Tantaldraht gezogen werden, zusammen. Berechnet wurden die Gesamtzykluszeiten für die Isotope der Elemente  $^{155}\text{Yb}$  und  $^{252,253,254}\text{No}$ . Tabelle 4.1 listet neben der jeweiligen optimalen Gesamtzykluszeit

**Tabelle 4.1:** Die Tabelle zeigt die optimalen Zykluszeiten in Abhängigkeit des Isotops. Neben der Gesamtzykluszeit ist die Dauer der Strahl aus und der Strahl an Phasen, entsprechend der Beschreibung aus Abbildung 2.10, angegeben. Weitere Informationen finden sich im Text.

Isotop	$T_{1/2}$ des Isotops	Gesamtzykluszeit [s]	Strahl aus ( $t_1$ ) [s]	Strahl an ( $t_0$ ) [s]
$^{155}\text{Yb}$	1,793 s [162]	6	3	3
$^{252}\text{No}$	2,44 s [163]	6,7	3	3,7
$^{253}\text{No}$	3,52 min [164]	42	5	37
$^{254}\text{No}$	51 s [165]	30	5	25

die korrespondierenden Strahl an ( $t_0$ ) und Strahl aus ( $t_1$ ) auf.

Für spätere Effizienzbetrachtungen der Messapparatur muss der Verlust aufgrund des radioaktiven Zerfalls während der Sammelphase bis zum Heizpuls des Filaments betrachtet werden. Anlehnend an [35] wird für die Berechnung der Zykluseffizienz  $\epsilon_{\text{Zerfall}}$  die folgende Gleichung angegeben

$$\epsilon_{\text{Zerfall}} = \frac{t_{1/2}}{\ln 2 \cdot T_{\text{puls}}} \cdot \left( 1 - e^{\frac{-T_{\text{puls}} \cdot \ln 2}{t_{1/2}}} \right). \quad (4.5)$$

Hierbei ist  $T_{1/2}$  die Halbwertszeit des Isotops und  $T_{\text{puls}} = t_0 + t_F$  die verstrichene Zeit der aktuellen Strahl an Phase plus der Zeit bis zum Anlegen des Heizpuls auf den Tantaldraht (vgl. Abbildung 2.10). Für die in dieser Arbeit betrachteten Isotope  $^{155}\text{Yb}$  und  $^{254}\text{No}$  stehen nach Ablauf von  $T_{\text{puls}}$  noch  $\epsilon_{\text{Zerfall-Yb}} = 0,52$  bei  $T_{\text{puls}} = 3,8\text{s}$  und  $\epsilon_{\text{Zerfall-No}} = 0,85$  bei  $T_{\text{puls}} = 26\text{s}$  der Ionen dem Experiment zur Verfügung. Unter der Berücksichtigung der Zeiten aus Tabelle 4.1 für die Strahl an und aus Phase wurden die in Abbildung 2.10 eingeführten Zeiten zur vollständigen Beschreibung der einzelnen Messzyklen für  $^{155}\text{Yb}$  und  $^{254}\text{No}$  bestimmt. Diese finden sich in der Tabellen 4.2.

Tabelle 4.2: Eingetragen sind die zur Definition des Messzyklus erforderlichen Zeiten  $t_{\text{Fil}}$ ,  $t_{\text{PIPS}}$ ,  $t_L$ ,  $t_{\text{Heiz}}$  und  $t_D / t_F$  aus Abbildung 2.10.

Isotop	$t_{\text{Fil}}$ [s]	$t_{\text{PIPS}}$ [s]	$t_L$ [s]	$t_{\text{Heiz}}$ [s]	$t_D / t_F$ [s]
$^{155}\text{Yb}$	3	2,4	2	0,3	0,3 / 0,8
$^{254}\text{No}$	25	4,4	3	0,3	0,3 / 1

### 4.3 On-line Messungen mit radioaktivem Ytterbium

Zur Charakterisierung der Messapparatur wurde anstelle von Nobelium, zu dem es bis zum jetzigen Zeitpunkt keinerlei experimentelle Daten zu den atomaren Übergängen gab, das chemische Homolog Ytterbium gewählt. Zu der Charakterisierung der Messapparatur gehört zuerst die genaue Identifikation der auf dem PIPS-Detektor gesammelten Fusionsprodukte. Dies wird in Abschnitt 4.3.1 beschrieben. Die nächsten zwei Kapitel 4.3.2 und 4.3.3 widmen sich der Optimierung kritischer Parameter der Messmethode zur Effizienzmaximierung. Danach wird das Sättigungsverhalten des ersten Anregungsschritts und die Lebensdauer des Singlett-P Zustands in Kapitel 4.3.5 studiert. Die Sättigung des zweiten nicht-resonanten Schritts wird in Abschnitt 4.3.6 bestimmt und abschliessend wird die erhaltene Maximaleffizienz für die nichtresonante Ionisation und die resonante Rydberganregung mit anschliessender Stoßionisation in Kapitel 4.3.7 berechnet. Sofern nicht anders erwähnt, wurden alle Datenpunkte auf einen Strahlstrom von  $300 \text{ nA}_p$  normiert. In Abbildung 4.5a) wird das zweistufige Anregungsschema dargestellt, welches während den Messungen in den folgenden Kapiteln verwendet wurde.

#### 4.3.1 Identifikation der gesammelten Fusionsprodukte auf dem PIPS-Detektor

Zur Identifikation der gesammelten Fusionsprodukte auf dem PIPS-Detektor wurden die Fusionsprodukte direkt nach dem Abstoppen auf den PIPS Detektor aufgesammelt. Dafür wurden die elektrischen Potentiale aus Tabelle 3.1 mit dem Vermerk **Potentialkonfiguration Detektor** an die jeweiligen Elektroden angelegt, die Fusionsprodukte auf den Detektor transportiert und die auftretenden Alphazerfälle registriert. Abbildung 5.1 zeigt ein typisches Zerfallsspektrum, welches bei einer solchen Transportmessung entsteht. In der Fokalebene haben Messungen mit dem 16 Si-Streifendetektor von SHIP eine zu erwartende  $^{155}\text{Yb}$  Ionenrate von  $6080 / \text{s}$  bei einem Strahlstrom von  $300 \text{ nA}_p$  ergeben (siehe Gleichung C.5). Produziert wird  $^{155}\text{Yb}$  mit der in Abschnitt 2.1.2 angegebenen Reaktion mit einem Wirkungsquerschnitt von  $8 \text{ mbarn}$ . Während einer Messzeit von  $120 \text{ s}$  wurden innerhalb eines Energiebereichs von  $5,07$  bis  $5,25 \text{ MeV}$ , welches dem Ytterbiumisotop  $^{155}\text{Yb}$  zugeteilt wurde,  $25560 \alpha$ -Zerfälle registriert<sup>10</sup>. Umgerechnet auf die pro Sekunde registrierte Rate ergibt dies  $R_{\text{Yb}-\alpha} = 213/\text{s}$  dem Zerfall von  $^{155}\text{Yb}$  korrespondierende Ereignisse, die auf dem PIPS-

<sup>10</sup>Kalibriert wurde das Spektrum nach den Messungen mit der Software Origin9.0 anhand des  $\alpha$ -Zerfallsspektrums von  $^{254}\text{No}$  aus Abbildung 5.1, bei dem die  $\alpha$ -Linien zweifelsfrei den Elementen Nobelium, Fermium und Californium zugeordnet werden konnten.

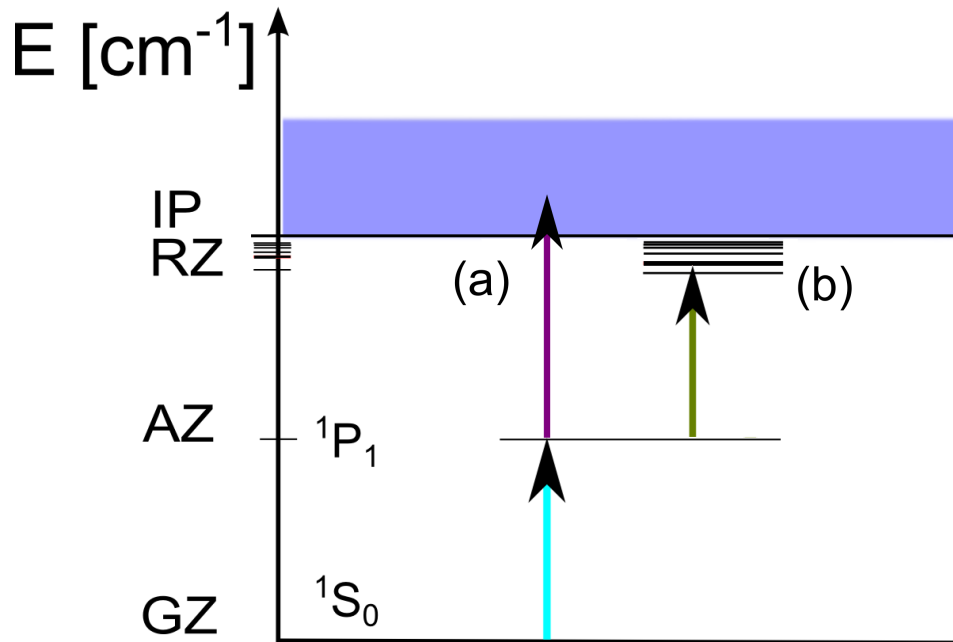


Abbildung 4.5: Dargestellt ist ein typisches zweistufiges Anregungsschema für die Resonanzionisation in Ytterbium. Vom Singlett-P-Zustand aus mit einer Anregungswellenzahl von  $\bar{\nu}_1 = 25068,2 \text{ cm}^{-1}$  kann sowohl nichtresonant (a), als auch resonant in diskrete Rydbergzustände (b) angeregt und ionisiert werden. Das erste Ionisationspotential (IP) liegt bei  $50443 \text{ cm}^{-1}$ . Angaben entnommen aus [166].

Detektor gemessen wurden. Zusätzlich konnten in Abbildung 4.6 die  $\alpha$ -Zerfälle von  $^{154}\text{Yb}$  und  $^{154,154m}\text{Tm}$  identifiziert werden. Die charakteristischen Zerfallseigenschaften aller genannten Isotope werden in Tabelle 4.3 zusammengefasst. Die Anwesenheit dieser Zerfälle ist ein Indiz dafür, dass neben dem gewünschten Ytterbiumisotop  $^{155}\text{Yb}$  weitere Ytterbiumisotope  $^{156}\text{Yb}$  und  $^{154}\text{Yb}$  in nicht vernachlässigbar kleinen Mengen produziert werden [51]. Eine qualitative Abschätzung des Mengenverhältnisses von  $^{154}\text{Yb}$  zu  $^{155}\text{Yb}$  hat ergeben, dass die Anzahl an produzierten  $^{154}\text{Yb}$  im Rahmen von etwa 10% der Menge an produzierten  $^{155}\text{Yb}$  entspricht (vgl. Grafik 4.6). Diese Annahme wird durch die HIVAP-Rechnungen aus Abschnitt 2.1.2 unterstützt, da der Wirkungsquerschnitt für die Produktion von  $^{154}\text{Yb}$  bei einer kinetischen Energie der Kalziumpartikel von  $4,55 \text{ MeV/u}$  etwa um einen Faktor 9 kleiner ist als für  $^{155}\text{Yb}$ . Eine Diskrepanz besteht jedoch bezüglich der Mengen an registrierter  $\alpha$ -Zerfälle von  $^{154,154m}\text{Tm}$  zu  $^{155}\text{Yb}$ , da diese laut Abbildung 4.6 mindestens innerhalb der gleichen Größenordnung liegt. Betrachtet man die Töchterzerfälle der Isotope von Ytterbium, so kann das betrachtete radioaktive Thuliumisotop lediglich durch die Umwandlung von  $^{154}\text{Yb}$  mit einer Wahrscheinlichkeit von 0,074 [167] entstehen. Die ho-



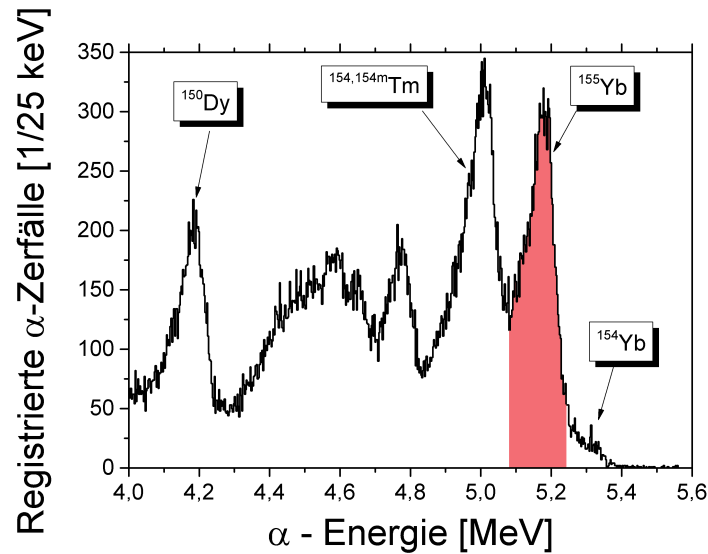


Abbildung 4.6:  $\alpha$ -Zerfallsspektrum der im Gas gestoppt und direkt auf den Detektor abgesaugten Fusionsprodukte. Das Spektrum wurde bei 80 mbar Argon und einer Messzeit von 120 s aufgenommen. Alle  $\alpha$ -Zerfälle innerhalb eines Bereiches in den Grenzen 5,07 MeV und 5,25 MeV (rot eingefärbt) wurden dem Isotop  $^{155}\text{Yb}$  zugeordnet, korrespondierend zu der in Tabelle 4.3 angegebenen  $\alpha$ -Zerfallsenergie. Desweiteren wurden die registrierten  $\alpha$ -Zerfälle von  $^{154}\text{Yb}$  und  $^{154}\text{Tm}$  markiert. Der Zerfall von  $^{156}\text{Yb}$  konnte im Spektrum nicht zugeordnet werden.

Die Anzahl an registrierten Thulium  $\alpha$ -Zerfällen kann also nicht nur durch den Zerfall von  $^{154}\text{Yb}$  erklärt werden, sondern dadurch, dass bei der energetischen Abregung des Verbundkerns nicht nur Neutronenabdampfung, sondern auch die Abdampfung von Protonen eine Rolle spielt ((vgl. Kapitel 2.1)).  $^{154,154m}\text{Tm}$  wäre der Verdampfungskern in der Reaktion  $^{112}\text{Sn}(^{48}\text{Ca}, p5n)^{154,154m}\text{Tm}$  und somit ein direktes Fusionsprodukt [51].

#### 4.3.2 Optimierung der Stoppverteilung in Abhängigkeit der Abbremsfoliendicke und des Puffergasdrucks

Das effiziente Stoppen der Fusionsprodukte innerhalb der Puffergaszelle ist bei einer niedrigen Produktionsrate von enormer Wichtigkeit. Die Verwendung von Abbremsfolien mit einer gleichzeitigen Anpassung des Puffergasdrucks innerhalb der Gaszelle erlaubt die Optimierung des Stoppens. Dies geschieht unter dem Gesichtspunkt, dass die Yb-Kerne innerhalb des Volumens auf Höhe der Sichtfenster ihre kinetische Energie verlieren und somit abgestoppt werden sollen. Zudem sollen Verluste durch Sammeln der Ionen auf den Befestigungshülsen des Filaments vermieden werden. Für die Messungen stehen neben der Folie auf dem Eintrittsfenster für die Messungen drei weitere Abbremsfolien aus Mylar (vgl.

Tabelle 4.3: Eingetragen sind die Zerfallseigenschaften der Isotope  $^{154,155,156}\text{Yb}$ ,  $^{154,154m}\text{Tm}$  und  $^{150}\text{Dy}$ .

Isotop	$T_{1/2}$ des Isotops	$\alpha$ -Energie [MeV]	$\alpha$ -Zerfallswahrscheinlichkeit	Referenz
$^{154}\text{Yb}$	0,409 s	5,331	0,926	[167]
$^{155}\text{Yb}$	1,793 s	5,200	0,89	[162]
$^{156}\text{Yb}$	26,1 s	4,687	0,9	[168]
$^{154}\text{Tm}$	8,1 s	4,956 / 4,825	0,54 / 0,0024	[167]
$^{154m}\text{Tm}$	3,30 s	5,031 / 4,840	0,58 / 0,0014	[167]
$^{150}\text{Dy}$	7,17 min	4,233	0,33	[169]

Kapitel 3.2) neben den Abbremsfolien innerhalb der Detektorkammer von SHIP ((vgl. Kapitel 3.1)) zur Verfügung, die unabhängig voneinander einzeln oder kombiniert in die Strahlebene gefahren werden können. Zur Optimierung der Stoppposition wurde die Menge an  $\alpha$ -Zerfällen von  $^{155}\text{Yb}$  in Abhängigkeit der in die Strahlebene eingefahrenen Abbremsfolien bei einem Gasdruck von 85 mbar gemessen. Danach wurde für die optimierte Anzahl an Abbremsfolien der Gasdruck mit einer Schrittweite von 5 mbar geändert und die korrespondierende Anzahl an  $\alpha$ -Zerfällen beobachtet. In beiden Messungen wurde auf die jeweils maximal erreichte Anzahl an detektierten  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Zerfällen normiert.

Wie bereits bei der Identifikation der Fusionsprodukte (vgl. 4.3.1) wurden die Elektroden während der Messzeit permanent mit der **Potentialkonfiguration Detektor** betrieben. Die Ergebnisse der Variation der Abbremsfolien sind in Abbildung 4.7(a) zu sehen und die Resultate der Druckmessung sind in Grafik 4.7(b) abgebildet. Bei der Variation der Abbremsfolien konnte ein Maximum bei einer Abbremsfoliendicke von  $4,5\text{ }\mu\text{m}$  extrahiert werden ((Abb. 4.7(a))). Die anschliessende Veränderung des Puffergasdrucks (Abb. 4.7(b)) zwischen 75 und 85 mbar ergab keine wesentliche Änderung in der Anzahl der detektierten  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Zerfälle auf dem PIPS-Detektor gezeigt. Ein Vergleich der Werte mit den Ergebnissen mit den SRIM-Simulationen zur Abstopfcharakteristik aus Kapitel 4.1.1, die auf Basis der experimentellen Daten zu der Dicke der Abbremsfolien und des Puffergasdrucks durchgeführt wurden, zeigt für  $^{155}\text{Yb}$  keine gute Übereinstimmung der berechneten Werte mit den experimentellen Daten. Aus den Messungen wurde ein Maximum bei einer Abbremsfoliendicke von  $4,5\text{ }\mu\text{m}$  zusätzlich zu der Dicke des Eintrittsfensters mit  $3,5\text{ }\mu\text{m}$  bei einem Puffergasdruck von 85 mbar erreicht. Laut den Simulationen liegt bei diesen Werten der Mittelpunkt der Ionenverteilung allerdings auf gleicher Höhe des Tantalfilaments. Eine Erklärung für diese Diskrepanz kann sein, dass die Energie, die in Gleichung 4.2 für die  $^{155}\text{Yb}$ -Ionen angegeben wird, zu hoch ist. Eine niedrigere Energie hätte zur Folge, dass die Position der Stoppverteilung sich mehr in Richtung des Mittelpunkts der Puffergaszelle bewegen würde. Da allerdings die Optimierung der experimentellen Parameter für Ytterbium nicht die primäre Zielstellung war, wurde diese Unvereinbarkeit zwischen experimentellen Daten und dem Ergebnis aus der Simulation nicht weiter studiert.

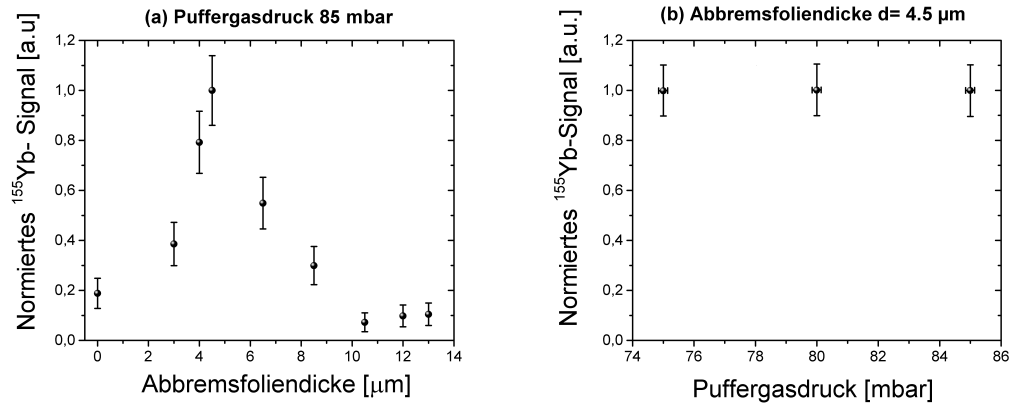


Abbildung 4.7: Messung der  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Aktivität durch Variation der Abbremsfolien (a) und des Puffergasdrucks (b). Pro Messpunkt wurde die Menge an  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Zerfällen für 100 Sekunden registriert und danach auf die maximal registrierte Anzahl an  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Zerfällen normiert. Insgesamt wurde die Dicke der Abbremsfolien zwischen 0 und 13  $\mu\text{m}$  und der Puffergasdruck zwischen 75 und 85 mbar in 5 mbar Schritten variiert. Die elektrischen Potentiale wurden aus Tabelle 3.1 mit dem Vermerk Potentialkonfiguration Detektor an die Elektroden angelegt.

Die hier optimierten Werte für die Dicke der Abbremsfolien und den Puffergasdruck werden für weitere Messungen als Ausgangspunkt verwendet.

#### 4.3.3 Einfluss der Filamentposition auf die Messmethode

Viele Prozesse, die rund um das Filament auftreten, beeinflussen wesentlich die Effizienz der RADRIS-Methode und lassen sich aufteilen in chemische und physikalische Prozesse. Ein wesentlicher physikalischer Prozess ist die Position des Tantaldrahtes relativ zum Aufenthaltort der abgestoppten Fusionsprodukte innerhalb der Zelle, dann relativ zum Laserinteraktionsvolumen und zum Schluß relativ zu den Extraktionselektroden. Für die Messung wurde die Schiebedurchführung inklusive des Tantaldrahts (vgl. Abschnitt 3.2) in horizontaler Achse verschoben. Der Parameter  $d_{\text{fil}}$ , der diese Bewegung entlang der horizontalen Achse relativ zum Mittelpunkt der Puffergaszelle beschreibt, wird schematisch in Abbildung 4.8 eingeführt. Um einen konstanten Überlapp von Laserinteraktionsvolumen mit dem Tantaldraht zu garantieren, wurde der Abstand der Laserstrahlen zur Filamentspitze konstant gehalten und deren Überlapp untereinander visuell überprüft. In diesen Messungen wurde die RADRIS-Methode (Kapitel 2.5.4) mit einem für das Ytterbiumisotop  $^{155}\text{Yb}$  optimierten Zyklus (vgl. Tabelle 4.1) mit dem Anregungsschema aus Abbildung 4.5(a) angewendet. Insgesamt wurden für verschiedene Positionen des Tantaldrahts die Menge der registrierten  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Zerfälle auf dem PIPS-Detektor für eine Messzeit von  $t_{\text{mess}} = 30$  s ge-

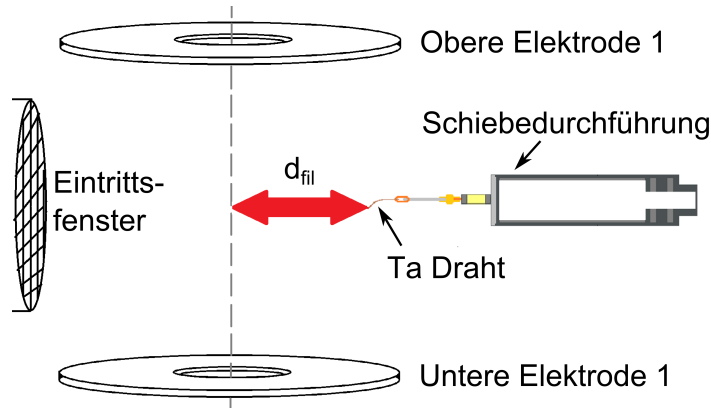


Abbildung 4.8: Definition des Filamentabstandsparameter  $d_{\text{fil}}$ . Mit Hilfe der Schiebedurchführung lässt sich die Position des Tantaldrachts relativ zum Eintrittsfenster und zum Mittelpunkt der Puffergaszelle verändern. Weitere Informationen finden sich im Text.

messen und anschliessend auf die maximal registrierte Menge an  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Zerfällen normiert. Die elektrischen Potentiale wurden den Werten aus Tabelle 3.1 entsprechend angelegt und der Tantaldraht wurde mit einem 300 ms langen Heizpuls von  $I = 2,2$  Ampere auf eine Temperatur von  $1200^\circ\text{C}$  gebracht. Die Laserpulsintensitäten wurden für die Messungen zu  $I_{\bar{\nu}_1} = 26,66 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  bzw.  $I_{\bar{\nu}_2} = 4,57 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  bei einer Laserfleckgröße von  $5 \text{ cm}^2$  für den ersten Anregungsschritt und  $8,75 \text{ cm}^2$  für den zweiten Anregungsschritt. Verwendet wurden Anregungswellenzahlen von  $\bar{\nu}_1 = 25068,2 \text{ cm}^{-1}$  und  $\bar{\nu}_2 = 28490 \text{ cm}^{-1}$ . Weitere experimentelle Randbedingungen wie die Anzahl der Abbremsfolien und der Puffergasdruck wurden im Vergleich zu den vorherigen Messungen nicht verändert und werden in Abschnitt 4.3.2 angegeben. Die Ergebnisse der Messungen sind in Abbildung 4.9 zu sehen. Die Messungen wurden dabei zu zwei verschiedenen Zeiten durchgeführt, lassen sich aber hinsichtlich der Randbedingungen vergleichen. Die Unsicherheiten in den Messungen aus 2012 (blaue Kugeln) sind aufgrund einer geringeren Anzahl an detektierten Ereignissen grösser als die Messungen aus 2015 (rote Quadrate).

Bei einer Filamentposition von  $d_{\text{fil}} = 0 \text{ mm}$  befindet sich der Draht in der Mitte der Puffergaszelle, korrespondierend zu einer Entfernung von  $68 \text{ mm}$  zum Eintrittsfenster. Ein reproduzierbares Maximum der gemessenen Anzahl von  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Zerfällen auf dem PIPS-Detektor konnte für eine Filamentposition von  $d_{\text{fil}} = 20 \text{ mm}$ , einer Entfernung von  $88 \text{ mm}$  zum Eintrittsfenster entsprechend, extrahiert werden. Die Menge an  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Zerfällen reduziert sich bereits bei Positionsänderungen im Bereich von  $\pm 5 \text{ mm}$  und sinkt um einen Faktor 8 bei einer Filamentposition von  $d_{\text{fil}} = 32 \text{ mm}$ , korrespondierend zu einer Entfernung des Tantaldrachts von  $100 \text{ mm}$  zum Eintrittsfenster. Zur Erklärung dieses Verhaltens können die Simulationen aus Kapitel 4.1 herangezogen werden. Aus dem Vergleich zu diesen Daten folgt, dass bei einer Filamentposition von  $d_{\text{fil}} = 0 \text{ mm}$  die  $^{155}\text{Yb}$ -Ionen hinter dem Filament

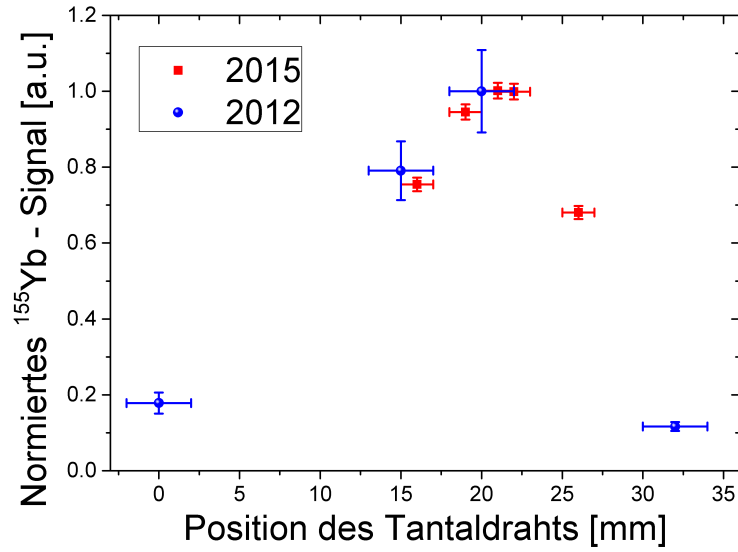


Abbildung 4.9:  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Aktivität für verschiedene Filamentpositionen von  $d_{\text{fil}} = 0$  mm bis 32 mm bei einer Messzeit von 30s. Gemessen wurde die Positionsabhängigkeit der registrierten Menge an  $\alpha$ -Zerfällen in zwei Strahlzeiten jeweils im Jahr 2012 (blaue Kugeln) und im Jahr 2015 (rote Quadrate). Bei einer Filamentposition von  $d_{\text{fil}} = 0$  mm befindet sich die Filamentspitze in der Mitte der Puffergaszelle, einer Distanz von etwa 68 mm zum Eintrittsfenster entsprechend.  $d_{\text{fil}} = 32$  mm entspricht einen Abstand von 100 mm von der Filamentspitze bis zum Eintrittsfenster. Die Laserpulsintensitäten lagen bei  $I_{\bar{\nu}_1} = 26,66 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  bzw.  $I_{\bar{\nu}_2} = 4,57 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  bei einer Anregungswellenzahl von  $\bar{\nu}_1 = 25068,2 \text{ cm}^{-1}$  und  $\bar{\nu}_2 = 28490 \text{ cm}^{-1}$ . Die Filamenttemperatur wurde zu  $1200^\circ\text{C}$  bestimmt und der Puffergasdruck bei 85 mbar gehalten.

gestoppt werden und somit nicht auf den Tantaldraht gesammelt werden können. Erst mit Erreichen von Abständen von  $d_{\text{fil}} \geq 15$  mm kann eine nennenswerte Menge an  $^{155}\text{Yb}$ -Ionen auf den Tantaldraht gebracht werden. Die korrespondierende Abnahme der Anzahl an detektierten  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Zerfällen bei Filamentpositionen von  $d_{\text{fil}} \geq 25$  mm ist verbunden mit Verlusten beim Transport der  $^{155}\text{Yb}$ -Ionen auf den PIPS-Detektor, wie Simulationen mit SIMION gezeigt haben.

#### 4.3.4 Einfluss der Filamenttemperatur auf die Messmethode

Neben dem Einfluss der Filamentposition wurde im nächsten Schritt das Abdampfverhalten von Ytterbium von Tantal studiert. Dazu wurde die  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Aktivität auf dem PIPS-Detektor bei Anwendung der RADRIS-Methode mit einem Anregungsschema wie in Abbildung 4.5(a)

in Abhängigkeit der Filamenttemperatur zwischen 980 und 1210 °C für eine Messzeit von je 30 s gemessen. Der Tantaldraht wurde für die Messungen auf einer Position von  $d = 20$  mm (vgl. Abschnitt 4.3.3) gehalten. Weitere experimentelle Parameter wie der Puffergasdruck, die Laserpulsenergien, die Laserfleckgröße, die angelegten Potentiale und der verwendete Messzyklus wurden zu den vorherigen Messungen nicht verändert und finden sich in Kapitel 4.3.3.

Abgebildet sind die Ergebnisse dieser Messungen in Grafik 4.10. Aus den Messungen lassen

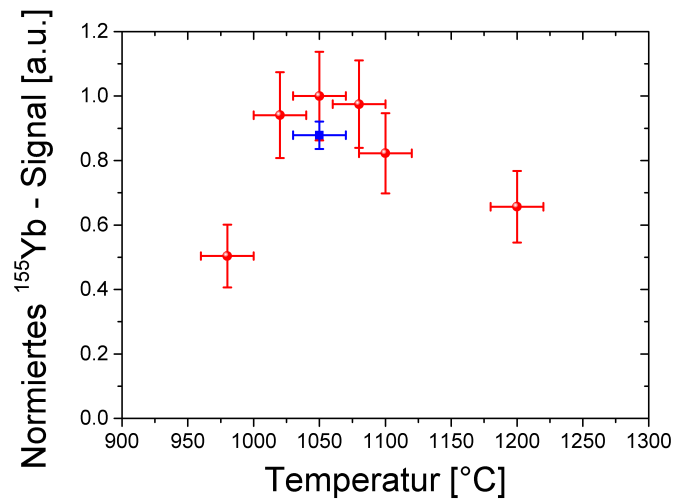


Abbildung 4.10: Registrierte  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Zerfälle gegenüber verschiedenen Filamenttemperaturen zwischen 980 und 1200 °C. Gemessen wurde für 30 Sekunden (schwarze Kugeln) bzw. 120 Sekunden (Blaue Quadrate). Die Pulsintensitäten der Laser wurden zu  $I_{\bar{\nu}_1} = 26,66 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  bzw.  $I_{\bar{\nu}_2} = 4,57 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  gemessen, mit den Anregungswellenzahlen  $\bar{\nu}_1 = 25068,2 \text{ cm}^{-1}$  und  $\bar{\nu}_2 = 28490,2 \text{ cm}^{-1}$  bei einer Strahlfläche von  $5 \text{ cm}^2$  bzw.  $8,75 \text{ cm}^2$ . Der Puffergasdruck in der Messapparatur lag bei 85 mbar.

sich folgende Schlussfolgerungen ziehen. Unterhalb von  $T \leq 1000$  °C findet keine effiziente Freisetzung von  $^{155}\text{Yb}$ -Atome statt, die ionisiert werden können. Zwischen einer Drahttemperatur von  $1000 \leq T \leq 1100$  °C wird ein maximaler räumlicher Überlapp zwischen den freigesetzten  $^{155}\text{Yb}$ -Atomen und dem Laserinteraktionsvolumen bei einer Temperatur von 1050 °C erreicht. Jenseits einer Filamenttemperatur von  $T \geq 1100$  °C vergrößert sich das Volumen der abgedampften Atome und somit verringert sich der räumliche Überlapp der Atome mit dem Laserinteraktionsvolumen, was ohne erneutes Anpassen des Laserinteraktionsvolumens zu einer Verringerung der Menge an laserinduzierten  $^{155}\text{Yb}$ -Ionen führt. Wie in Anhang E gezeigt wird, intensiviert ein höherer Wärmeeintrag in das Gasvolumen konvektive Effekte, die zu einer Verlagerung der abgedampften Atome führen und den Überlapp mit dem Laserinteraktionsvolumen verringern. Für Experimente an Nobelium wird ein

ähnliches Abdampfverhalten angenommen wie bei Ytterbium, sodass die Temperatur des Filaments daher unterhalb 1100 °C liegen sollte, da ansonsten kein optimaler Überlapp zwischen den abgedampften Atomen und dem Laserinteraktionsvolumen mehr bestünde. Idealerweise empfiehlt sich somit die Verwendung einer Filamenttemperatur von 1050 °C, welche im Rahmen des Fehlers mit der in [55] angegebenen Freisetzungstemperatur von 1076 °C überlappt.

#### 4.3.5 Sättigungscharakteristik und Lebensdauer des Singulett-P-Zustands in Ytterbium

Ein wichtiger Parameter zur Beschreibung eines atomaren Übergangs ist seine natürliche Lebensdauer  $\tau$ , welche über zwei Ansätze extrahiert werden kann. Der erste Weg beschreibt die Bestimmung der Lebensdauer über die Betrachtung des Sättigungsverhaltens in Abhängigkeit der Photonenflussdichte  $\Psi_1$  des ersten Anregungsschritts. Aus dem Studium des Sättigungsverhaltens lässt sich der optische Wirkungsquerschnitt  $\sigma_1$  bestimmen, mit dem man nach Gleichung 2.38 den Einstein-Koeffizient  $A_{ki}$  für den spontanen Zerfall des angeregten Zustands  $|k\rangle$  in den Grundzustand  $|i\rangle$  bestimmen kann. Die Lebensdauer eines Übergangs mit hohem  $A_{ki}$  kann näherungsweise zu

$$\tau = \frac{1}{A_{ki}}$$

bestimmt werden. Da dies allerdings im Rahmen eines Zwei-Niveau-Systems geschieht, werden die im folgenden berechneten Werte für  $A_{ki}$  und  $\tau$  als untere bzw. obere Grenze gesehen. Die zweite experimentelle Technik zur Extraktion der Lebensdauer  $\tau_{ki}$  besteht in der zeitlichen Verzögerung des zweiten Anregungsschrittes  $t_{\nu_2}$  relativ zum ersten Anregungsschritt. Aus dieser Betrachtung lässt sich durch die Datenanpassung eines exponentiellen Zerfalls direkt die Lebensdauer des angeregten Zustands  $|k\rangle$  extrahieren. Dabei wird die allerdings die effektive Lebensdauer bestimmt, welche Effekte durch Gaskollisionen und durch die Photoionisation beinhaltet, und daher ein unteres Limit an die natürliche Lebensdauer darstellt. Im Folgenden werden beide Ansätze zum Studium der Lebensdauer des atomaren Zustands verfolgt.

#### Sättigungscharakteristik des ersten Anregungsschritts in Ytterbium

Zur Untersuchung der Sättigungscharakteristik des Singulett-P-Zustands in  $^{155}\text{Yb}$  wurde die Menge an registrierten  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Zerfällen auf dem PIPS-Detektor in Abhängigkeit der Photonenflussdichte  $\Psi_1$  des ersten Anregungsschritts gemessen und nachfolgend auf die maximale Anzahl an registrierten  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Zerfällen normiert.

Mit Hilfe des Oszillator-Pumpstrahlabschwächers im Farbstofflaser wurde  $\Psi_1$  zwischen 0 und  $7,7 \cdot 10^{13} \frac{\text{Photonen}}{\text{Puls} \cdot \text{cm}^2}$  verändert. Der Umrechnungsfaktor wurde zu

$1 \mu\text{J}/\text{cm}^2 = 4,01 \cdot 10^{11} \frac{\text{Photonen}}{\text{cm}^2}$  bei einer Strahlfläche von  $A_{\Psi_1} = 5 \text{ cm}^2$  berechnet.

Die Photonenflussdichte des zweiten Anregungsschritts wurde analog mit einer Emissions-

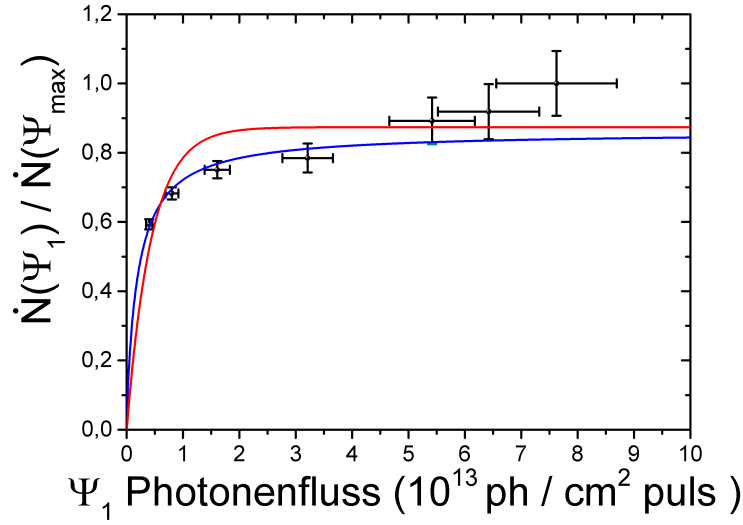


Abbildung 4.11: Sättigungsverhalten des ersten Anregungsschritts. Zusätzlich zu den Messpunkten sind die Datenanpassungen der verwendeten Modelle (Rote Linie Gleichung 2.37, blaue Linie Gleichung 2.34) eingezeichnet. Der Photonenfluss des ersten Anregungsschritts wurde zwischen 0 und  $8 \cdot 10^{13} \frac{\text{Photonen}}{\text{Puls} \cdot \text{cm}^2}$  variiert und die korrespondierende Menge an  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Zerfällen gemessen und anschliessend auf das Maximum normiert. Der zweite Anregungsschritt wurde mit einer Photonenflussdichte von  $\Psi_2 = 7,26 \cdot 10^{15} \frac{\text{Photonen}}{\text{Puls} \cdot \text{cm}^2}$  in die Puffergaszelle eingeschossen. Die Filamenttemperatur lag während den Messungen bei 1050 °C bei einem Puffergasdruck von 85 mbar.

wellenlänge von 351 nm bei einer Pulsenergie von 36 mJ zu  $\Psi_2 = 7,3 \cdot 10^{15} \frac{\text{Photonen}}{\text{Puls} \cdot \text{cm}^2}$  bestimmt. Die Unsicherheit in der Photonenflussdichte  $\Delta\Psi_1$  (x-Fehler) wurde in der Bestimmung des normierten Ionenzahlfehlers  $\Delta\dot{N}(P_S)$  (y-Fehlers) mit der in [53] vorgestellten Methode berücksichtigt. Dazu wurde eine Funktion der Form [26]

$$\dot{N} = k(1 - e^{-w\Psi_1}) \quad (4.6)$$

an die Messdaten aus Abbildung 4.11 angepasst und die Parameter  $k$  und  $w$  extrahiert. Der Gesamtfehler in der Zahl der registrierten  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Zerfälle wird dann dem gaußschen Fehlerfortpflanzungsgesetz folgend bestimmt [26].

Die Ergebnisse der Messungen der Sättigungscharakteristik des atomaren Niveaus werden in Abbildung 4.11 dargestellt und die Resultate der Lebensdauermessungen werden in Abbildung 4.12 gezeigt.



An die Datenpunkte aus Abbildung 4.11 wurde der optische Wirkungsquerschnitt  $\sigma_\omega$  mit den Modellanpassungen aus Gleichung 2.34 und 2.37 zu

$$\sigma_{\omega-\text{exp}} = (2,3 \pm 0,6) \cdot 10^{-13} \text{ cm}^2$$

$$\sigma_{\omega-\text{opt}} = (2,4 \pm 0,5) \cdot 10^{-13} \text{ cm}^2$$

bestimmt.  $\Delta \bar{\nu}_1$  als die Halbwertsbreite des Anregungslasers wurde mit Hilfe eines Monitoretalons bei einer Anregungswellenzahl von  $\bar{\nu}_1 = 25068,2 \text{ cm}^{-1}$  zu  $\Delta \nu_1 = 5,6 \text{ GHz}$ . Mit der Bestimmung des optischen Wirkungsquerschnitts  $\sigma_1$  kann mit Gleichung 2.38 eine untere Grenze für den Einstein-Koeffizient für den spontanen Zerfall mit der Modellannahme aus Gleichung 2.37 zu

$$A_{\text{ki-exp}} \geq 3,8 \cdot 10^7 / \text{s}$$

und aus Gleichung 2.34 mit

$$A_{\text{ki-opt}} \geq 4,0 \cdot 10^7 / \text{s}$$

berechnet werden mit der korrespondierenden modellabhängigen Lebensdauer  $\tau_{\text{exp}} \leq 26,3$  und  $\tau_{\text{opt}} \leq 25 \text{ ns}$ .

### Lebensdauer durch zeitliche Verzögerung

Alternativ wurde die Lebensdauer durch die zeitliche Verzögerung untersucht. Zur Bestimmung der Lebensdauer des Singulett-P-Zustands in Ytterbium wurde der zweite Anregungsschritt  $\bar{\nu}_2$  zeitlich relativ zum ersten Anregungsschritt  $\bar{\nu}_1$  mit der Verzögerungszeit  $t_{\bar{\nu}_2}$  schrittweise verzögert. Eine genaue Beschreibung der Kontrolle des zeitlichen Unterschieds der Laser kann in Kapitel 3.3.2 gefunden werden. Durchgeführt wurden die Messungen bei Laserpulsintensitäten von  $I_{\bar{\nu}_1} = 85,94 \frac{\mu\text{J}}{\text{cm}^2}$  für den ersten Anregungsschritt bei einer Strahlfläche von  $3,142 \text{ cm}^2$  sowie  $I_{\bar{\nu}_2} = 4,11 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$  für den zweiten Anregungsschritt mit einer Strahlfläche von  $8,75 \text{ cm}^2$ . Weitere experimentelle Randbedingungen waren denen aus Kapitel 4.3.3 gleich. Insgesamt wurden 46 Messpunkte mit unterschiedlichen Verzögerungszeiten aufgenommen und für jede Verzögerungszeit  $t_{\bar{\nu}_2}$  wurde die Menge an  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Zerfällen auf dem PIPS-Detektor bei einer Messzeit von  $t_{\text{mess}} = 300 \text{ s}$  registriert und anschliessend auf die maximale Anzahl detektierter  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Zerfälle normiert. Die Messdaten aus Abbildung 4.12 wurden mit einem einfachen exponentiellen Zerfall mit der Lebensdauer  $\tau_1$  (rote Kurve in Abbildung 4.12) angepasst. Bei der Datenanpassung wurde die Breite von  $18 \text{ ns}$  und der Jitter von  $10 \text{ ns}$  der Laser relativ zueinander beachtet und die Datenpunkte erst ab einer Verzögerungszeit von  $+16 \text{ ns}$  berücksichtigt.

Durch eine  $\chi^2$  - Minimierung wurde eine Lebensdauer des Zustands von

$$\tau_1 = 35,60 \pm 10,82 \text{ ns} \quad (4.7)$$

ermittelt.

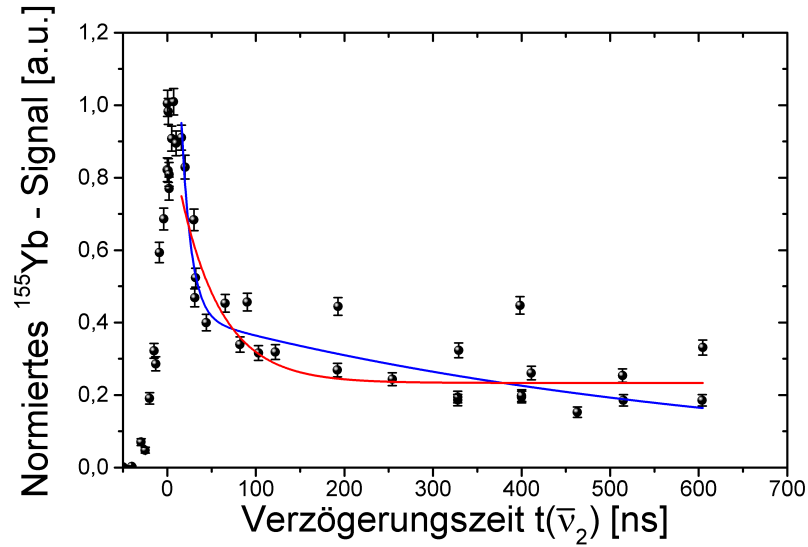


Abbildung 4.12: Lebensdauerermessung des Singulett-P-Zustands in  $^{155}\text{Yb}$  bei einem Puffergasdruck von 85 mbar. Relativ zu dem ersten Schritt wurde der zweite Anregungsschritt mit einer Verzögerungszeit von  $t_{\bar{\nu}_2}$  in die Puffergaszelle eingeschossen und die jeweilige Menge an registrierten  $^{155}\text{Yb}$ -Zerfälle anschliessend auf das Maximum normiert. An die Datenpunkte wurde ein einfacher exponentieller Zerfall (rot) und eine exponentielle Zerfallscharakteristik mit drei unterschiedlichen Lebensdauern (blau) angepasst. Die Laserpulsintensitäten lagen bei  $I_{\bar{\nu}_1} = 85,94 \frac{\mu\text{J}}{\text{cm}^2}$  für den ersten Anregungsschritt und  $I_{\bar{\nu}_2} = 4,11 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$  für den zweiten Anregungsschritt. Die Filamenttemperatur wurde bei  $1050^\circ\text{C}$  gehalten.

### Diskussion der Ergebnisse

An dieser Stelle werden die Ergebnisse der Sättigungsmessungen und der Lebensdauerermessungen miteinander und mit Literaturangaben verglichen.

Als Literaturwerte werden ein Einstein-Koeffizient von  $A_{ki-\text{lit}} = 1,92 \cdot 10^8 / \text{s}$  mit einer korrespondierenden Lebensdauer von  $\tau_{ki-\text{lit}} = 5,21 \text{ ns}$  angegeben [171]. Vergleicht man diese Werte mit den Ergebnissen der Sättigungsmessungen, so unterscheiden sich die Einstein-Koeffizienten um einen Faktor 5 und dementsprechend ist die Lebensdauer des Zustands in Gleichung 4.3.5 um einen Faktor 5 größer. Bei der Betrachtung der Lebensdauerermessungen konnte der Literaturwert  $\tau_{\text{sp}}(\text{lit})$  mit dem Ansatz eines einfachen exponentiellen Zerfalls ebenfalls nicht wiedergegeben werden. Aus der Datenanpassung hat sich eine Lebensdauer von  $\tau_1 = 35,60 \text{ ns}$  ergeben, einer Abweichung um einen Faktor 7 entsprechend. Eine genauere Untersuchung der Datenpunkte aus Abbildung 4.12 zeigt nach dem schnellen Abfall der registrierten Menge an  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Zerfällen zwischen  $t_{\bar{\nu}_2} = 20 \text{ ns}$  und  $t_{\bar{\nu}_2} = 50 \text{ ns}$  einen wesentlich langsamerem Abklingen der noch messbaren Menge an  $\alpha$ -Zerfällen ab einer Ver-

zögerungszeit von  $t_{v_2} = 50 \text{ ns}$ . Bis zu einer Verzögerungszeit von  $t_{v_2} = 600 \text{ ns}$  sinkt das Verhältnis der registrierten Anzahl von  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Zerfällen von 40% der maximalen gemessenen  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Zerfällen auf einem Wert von circa 20% ab.

Die Unvereinbarkeit der Ergebnisse aus der Sättigungsmessung, bei der die Leistungsver-

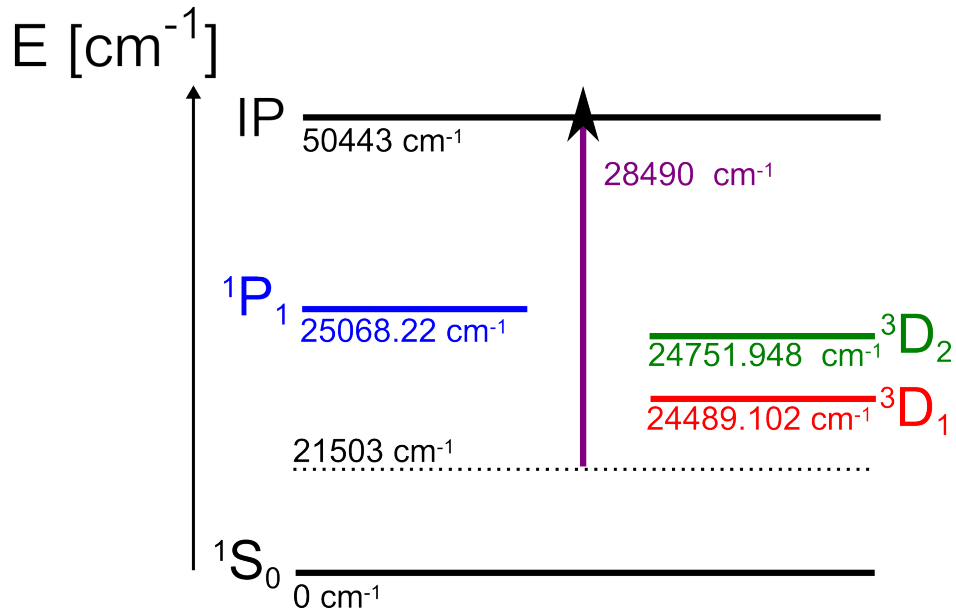


Abbildung 4.13: Ein Teilausschnitt aus dem Niveauschema von Ytterbium. Dargestellt sind neben dem Singulett-P Zustand, dem Grundzustand und dem Ionisationspotential die nächstliegenden Triplett-D Zustände. Die Positionen der Zustände wurden aus [166] entnommen. Die gestrichelte Linie markiert die untere Grenze des Bereiches, in dem durch nachfolgendes Laserlicht (lila Pfeil) der Wellenzahl  $28490 \text{ cm}^{-1}$  ( $351 \text{ nm}$ ) ionisiert werden kann.

breiterung durch hohe Photonenflüsse nicht berücksichtigt wurde, und aus Gleichung 4.7 zu den Angaben aus der Literatur lässt den Schluss zu, dass die Entvölkerung des Singulett-P-Zustands neben der Ionisation und des spontanen Zerfalls in den Grundzustand auch durch Stoßrelaxation wegen der Anwesenheit von Ar-Puffergas geschieht. Die Effektivität dieses Umpumpprozesses hängt dabei maßgeblich von dem Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{km}$  für eine solche Reaktion ab [105]. Der Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{km}$  ist dabei abhängig von der Temperatur der Umgebung, und somit von der kinetischen Energie der miteinander wechselwirkenden Atome, und vom energetischen Abstand der atomaren Übergänge, zwischen denen der Umpumpprozess dann initiiert wird.

Laut der Literatur [166] gibt es die Feinstruktur-D-Triplett Zustände in unmittelbarer Nähe des Singulett-P Zustands. Diese liegen laut Abbildung 4.13 durch den Vergleich der Wellenzahlen lediglich  $316$  bzw.  $579 \text{ cm}^{-1}$  entfernt von dem Singulett-P-Zustand  $6s6p \ ^1P_1$ .

Durch die Einstrahlung eines hochenergetischen zweiten nichtresonanten Anregungsschritt bei einer Wellenzahl von  $\bar{\nu}_2 = 28490 \text{ cm}^{-1}$  ist die Bedingung aus Gleichung 2.18 bei einem Ionisationspotential von  $E_{\text{IP}} = 50443 \text{ cm}^{-1}$  [166] auch für die  $^3\text{D}_{2,1}$ -Zustände erfüllt, so dass auch hieraus ionisiert werden kann. Mit einer thermisch verfügbaren Energie von  $E_T = 3/2 k_B \cdot T_{\text{Gas}} = 417 \text{ cm}^{-1}$ , korrespondierend zu einer Temperatur in der Umgebung des Tantaldrahts von 400 K, können Stöße für eine Zustandsumverteilung der angeregten Ytterbiumatome führen. Um diese Annahme zu überprüfen, wurden an die Datenpunkte in Abbildung 4.12 drei exponentielle Zerfälle mit den Lebensdauern  $\tau_2$ ,  $\tau_3$  und  $\tau_4$  angepasst. Hierbei wurde  $\tau_2$  als freier Parameter für die Lebensdauer des Singulett-P-Zustand betrachtet, während  $\tau_3 = 460 \text{ ns}$  [170] für den  $5d6s \ ^3\text{D}_2$  Zustand und  $\tau_4 = 380 \text{ ns}$  [170] für den  $5d6s \ ^3\text{D}_1$  Zustand fixiert wurden. Durch eine  $\chi^2$  - Minimierung konnte eine Lebensdauer von

$$\tau_2 = (7,61 \pm 0,78) \text{ ns} \quad (4.8)$$

bestimmt werden. Vergleicht man den Wert aus Gleichung 4.8 mit dem Literaturwert, so ist die aus der Datenanpassung erhaltene Lebensdauer des Singulett-P-Zustand um einen Faktor 1,46 größer als die in [171] angegebene Lebensdauer, liegt aber dennoch wesentlich näher an diesem Wert als die Resultate der Sättigungsmessung und aus Gleichung 4.7. Durch die verhältnismäßig geringe Abweichung des Wertes mit dem Literaturwert hat sich die Verwendung von drei exponentiellen Zerfällen als Datenanpassungsfunktion als zielführend zur Beschreibung der Verzögerungsmessungen in Ytterbium erwiesen. Die getätigte Annahme, das neben dem Singulett-P Zustand beide tieferliegende Feinstruktur-D-Triplettzustände bei der nichtresonanten Ionisation mit Laserlicht der Wellenlänge 351 nm eine Rolle spielen, ist also zutreffend.

Aus diesen Messungen lassen sich nicht die genauen Raten, mit denen die Stoßrelaxation in die tieferliegenden Triplett-D- Zustände geschieht, bestimmen. Da sich im Fall von Nobelium ebenfalls ein Feinstruktur-D-Triplettzustand in der Nähe des Singulett-P Zustands befindet (vgl dazu [5]), muss berücksichtigt werden, dass sich bei Verzögerungsmessungen der Art wie sie an dieser Stelle durchgeführt wurden ein ähnliches Bild ergeben kann.

#### 4.3.6 Sättigungsverhalten des zweiten Anregungsschritts

Die Effizienz der RADRIS-Methode hängt maßgeblich von der Art des Ionisationsprozesses ab. Aufgrund dessen (vgl. Abbildung 4.5a)) wurde das Sättigungsverhalten des zweiten Anregungsschritts studiert. Hierbei wurde die Photonenflussdichte des zweiten Schrittes bei 351 nm zwischen  $\Psi_2 = 8 - 17 \cdot 10^{15} \frac{\text{Photonen}}{\text{Puls} \cdot \text{cm}^2}$  bei einer Photonenflussdichte des ersten Anregungsschritts  $\Psi_1 = 1,022 \cdot 10^{14} \frac{\text{Photonen}}{\text{Puls} \cdot \text{cm}^2}$  variiert. Für jeden Messpunkt wurde die  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Aktivität für 30 s gemessen und danach auf das Maximum der  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Aktivität normiert. Die weiteren experimentellen Parameter wurden zur vorherigen Messung nicht verändert und finden sich daher in Abschnitt 4.3.5. Zur Bestimmung des optischen Wirkungsquer-

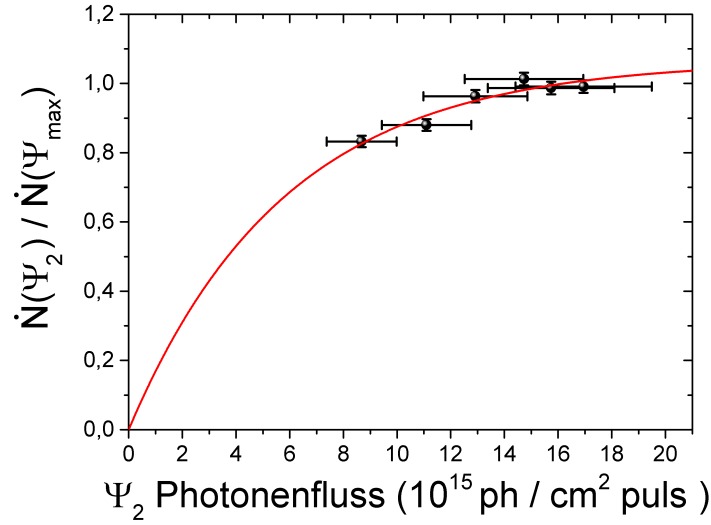


Abbildung 4.14: Die Sättigungsmessung für den zweiten Ionisationsschritt (351 nm) in  $^{155}\text{Yb}$ . Die Photonenflussdichte des ersten Anregungsschritts wurde zu  $\Psi_1 = 1,022 \cdot 10^{14} \frac{\text{Photonen}}{\text{Puls} \cdot \text{cm}^2}$  gemessen. Der Puffergasdruck innerhalb der Messapparatur lag bei 85 mbar und die Temperatur des Filaments bei 1050 °C. Für jeden Messpunkt wurde die  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Aktivität für 30 s gemessen und danach auf das Maximum normiert.

schnitts  $\sigma_2$  wurde Gleichung 2.19 an den Datensatz aus Abbildung 4.14 angepasst. Für den optischen Wirkungsquerschnitt  $\sigma_2$  wurde ein Wert von

$$\sigma_2 = (1,7 \pm 0,2) \cdot 10^{-16} \text{cm}^2 \quad (4.9)$$

extrahiert. In [105] werden üblicherweise Wirkungsquerschnitte im Bereich von  $10^{-16}$  bis  $10^{-18} \text{cm}^2$  erwartet, somit liegt der bestimmte Wert im Rahmen der Erwartungen.

### 4.3.7 Gesamteffizienz der Puffergaszelle und Effizienzabschätzung für $^{254}\text{No}$

Die experimentelle Gesamteffizienz der RADRIS-Puffergaszelle  $\epsilon_{\text{MP}}$  bestimmt sich aus dem Verhältnis der registrierten  $\alpha$ -Zerfällen auf dem PIPS-Detektor  $R_{\text{PIPS}}^{\alpha}$  zu der in Fokalebene von SHIP ankommenden Ionenrate  $R_{\text{SHIP}}^{\text{Ion}}$  Rate,

$$\epsilon_{\text{MP}} = \frac{R_{\text{PIPS}}^{\alpha}}{R_{\text{SHIP}}^{\text{Ion}}} \quad (4.10)$$

mit dem zugehörigen, dem gausschen Fehlerfortpflanzungsgesetz folgenden Fehler

$$\Delta\epsilon_{\text{MP}} = \sqrt{\left(\Delta R_{\text{PIPS}}^{\alpha} \left(\frac{1}{R_{\text{SHIP}}^{\text{Ion}}}\right)\right)^2 + \left(\Delta R_{\text{SHIP}}^{\text{Ion}} \left(\frac{R_{\text{PIPS}}^{\alpha}}{(R_{\text{SHIP}}^{\text{Ion}})^2}\right)\right)^2}. \quad (4.11)$$

Zur Bestimmung der Gesamteffizienz werden alle gemessenen Raten auf einen Strahlstrom von 300 nA<sub>p</sub> normiert.

In Anhang C findet sich die Berechnung der in Fokalebene gemessenen Rate an  $^{155}\text{Yb}$  Ionen. Die Menge an  $^{155}\text{Yb}$ -Zerfällen  $N_{\text{PIPS}}^{\alpha}$  geteilt durch die Messzeit ergibt die registrierte  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Rate auf dem PIPS-Detektor

$$R_{\text{PIPS}}^{\alpha} = \frac{N_{\text{PIPS}}^{\alpha}}{t_{\text{mess}}} \quad (4.12)$$

Innerhalb einer Messzeit von  $t_{\text{mess}} = 30$  s wurden insgesamt  $N_{^{155}\text{Yb}} = 2400$   $\alpha$ -Ereignisse auf dem PIPS-Detektor nachgewiesen, korrespondierend zu einer  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$ -Rate von  $R_{\text{PIPS}}^{\alpha} = (80 \pm 2)$  /s. Die Gesamteffizienz der Zelle bestimmt sich mit Gleichung 4.10 und Gleichung C.5 für  $^{155}\text{Yb}$  somit zu

$$\epsilon_{\text{MP}} = (1,3 \pm 0,1)\% \quad (4.13)$$

Anlehnend an [35] wird die Gesamteffizienz der Puffergaszelle durch folgende Einzeleffizienzen faktorisiert

$$\epsilon_{\text{MP-theo}} = \epsilon_{\text{Fenster}} \cdot \epsilon_{\text{stop}} \cdot \epsilon_{1\text{-neutr.}} \cdot \epsilon_{\text{Sammel}} \cdot \epsilon_{\text{Zerfall}} \cdot \epsilon_{\text{EvapRIS}} \cdot \epsilon_{\text{detekt}} \cdot \epsilon_{\alpha}. \quad (4.14)$$

Einige dieser Effizienzen sind elementspezifisch und unterscheiden sich daher. Zur besseren Beschreibung der einzelnen Effizienzen wurden soweit möglich Simulationen und Abschätzungen durchgeführt. Die spezifischen Werte in Abhängigkeit des Elements sind in Tabelle 4.4 zusammengestellt.  $^{254}\text{No}$  hat aufgrund einer besseren Strahlfokussierung eine höhere Transmissionseffizienz ( $\epsilon_{\text{Fenster}}$ ) als  $^{155}\text{Yb}$  und wird im Vergleich zu  $^{155}\text{Yb}$  ungefähr im Zentrum der Puffergaszelle (vgl. Abschnitt 4.1) gestoppt ( $\epsilon_{\text{stop}}$ ). Daher lässt sich  $^{254}\text{No}$  effizienter auf den Tantaldraht aufsammeln ( $\epsilon_{\text{Sammel}}$ ) (beide Kapitel 4.1). Weitere Einbußen ergeben sich aus dem Verhältnis der Sammelzeit der Fusionsprodukte auf den Tantaldraht gegenüber der Halbwertszeit  $T_{1/2}$  des Elements  $\epsilon_{\text{Zerfall}}$  (siehe Abschnitt 4.2).

Tabelle 4.4: Auflistung der Einzeleffizienzen für  $^{155}\text{Yb}$  und  $^{254}\text{No}$ . Unterschiede ergeben sich hinsichtlich der ungleichen Randbedingungen wie Kinematik, Stoppposition innerhalb der Puffergaszelle, Halbwertszeit usw.

Effizienz	$^{155}\text{Yb}$	$^{254}\text{No}$	Bedeutung
$\epsilon_{\text{Fenster}}$	0,66	0,76	Transmission durch das Eintrittsfenster
$\epsilon_{\text{stop}}$	0,95	1	Stopeffizienz im Puffergas
$\epsilon_{1-\text{neutr.}}$	0,85	0,93	Menge der gestoppten Ionen
$\epsilon_{\text{Sammel}}$	0,37	0,88	Sammeleffizienz auf Tantaldraht
$\epsilon_{\text{Zerfall}}$	0,51	0,85	Zyklusverluste durch Zerfall
$\epsilon_{\text{detekt}}$	0,40	0,40	Raumwinkelabdeckung PIPS-Detektor
$\epsilon_{\alpha}$	0,89	0,9	$\alpha$ - Zerfallswahrscheinlichkeit
$\epsilon_{\text{EvapRIS}}$			Kombinierte Abdampf- und Ionisationseffizienz
$\epsilon_{\text{MP-theo}}$	<b>0,036</b> $\epsilon_{\text{EvapRIS}}$	<b>0,19</b> $\epsilon_{\text{EvapRIS}}$	Abgeschätzte Gesamteffizienz

Aus dem Vergleich zwischen der erwarteten Gesamteffizienz  $\epsilon_{\text{MP-theo}}$  zu der gemessenen Gesamteffizienz aus Gleichung 4.13 kann die kombinierte Abdampf- und RIS-Effizienz  $\epsilon_{\text{EvapRIS}}$  für  $^{155}\text{Yb}$  abgeschätzt werden zu

$$\epsilon_{\text{EvapRIS}} = \frac{\epsilon_{\text{MP}}}{\epsilon_{\text{MP-theo}}} = 0,3666. \quad (4.15)$$

Erwartet man im Fall von  $^{254}\text{No}$  einen vergleichbaren Wert von  $\epsilon_{\text{EvapRIS}}$ , so ergibt sich eine Gesamteffizienz von

$$\epsilon_{\text{MP}} = 0,19 \cdot 0,3666 = 0,0696 \approx 7\%. \quad (4.16)$$

# Kapitel 5

## Experimente an Nobelium

Nobelium zählt mit seiner Kernladungszahl  $Z = 102$  zu den schwersten Elementen des Periodensystems. In diesem Bereich der schwersten Elemente gewinnen relativistische Effekte massiv an Bedeutung und haben einen signifikanten Einfluss auf die Schalenstruktur der Atome und insbesondere auf die Valenzelektronenkonfiguration. Trotz der einfachen Grundzustandskonfiguration der Valenzelektronen mit  $^1S_0$  weichen die theoretischen Vorhersagen zur Lage des niedrigsten Singlett-P Zustands in Nobelium voneinander ab (vgl. Kapitel 2.4.1). Zudem sind bisher keine experimentellen Daten zur Lage der atomaren Zustände in Nobelium vorhanden. Dieses Kapitel gliedert sich in zwei Teile. Kapitel 5.1 beschreibt die ersten Experimente auf dem Weg zur optischen Spektroskopie an Nobelium. Diese Messungen wurden vor dem Beginn dieser Arbeit durchgeführt und bilden die Ausgangslage für die im weiteren vorgestellten experimentellen Ergebnisse. Kapitel 5.2 befasst sich mit den weiterführenden Experimenten an Nobelium, die im Rahmen dieser Arbeit in den Jahren 2014 und 2015 aufbauend auf den im Yb Kapitel 4.3 vorgestellten Optimierungen durchgeführt wurden. Hierbei konnte zum ersten mal ein atomarer Übergang in Nobelium identifiziert und charakterisiert werden.

### 5.1 Stand der Laserspektroskopie an Nobelium

Bereits im Jahr 2007 wurde mit Vorbereitungen der Laserspektroskopie an Nobelium begonnen. Hierbei wurde die Desorptionseenthalpie von Nobelium von Tantal erfolgreich bestimmt (Kapitel 5.1.1) und die Suche nach dem Singulett-P-Zustands gestartet (Kapitel 5.1.2).

#### 5.1.1 Desorptionseenthalpie von Nobelium von Tantal

Eine wichtige Eigenschaft eines Elements für die Laser-Experimente ist die Freisetzungstemperatur bzw. die Desorptionseenthalpie des zu untersuchenden Elements von einem geeigneten Trägerfilament. Studien zur Niveausuche können erst gestartet werden, sobald mit hoher Verlässlichkeit ein Abdampfen der Nobeliumatome im atomaren Zustand in das Gasvolumen ermöglicht werden kann. Mögliche Verlustkanäle sind neben dem Untergrund durch Oberflächenionisation die Bildung von Oxiden durch Verunreinigungen im Gas oder der Oberfläche des Filaments. Um dies zu verhindern, wird ein Filamentmaterial benötigt,



welches z.B. Sauerstoff binden kann. Die Wahl fiel deshalb auf das Übergangsmetall Tantal, da es neben der letztgenannten Fähigkeit ausserdem eine hohe Schmelztemperatur und eine gute elektrische Leitfähigkeit besitzt.

In einer dedizierten Messreihe wurde die Desorptionsenthalpie mit dem Zusammenhang aus [172] für Nobelium von Tantal mit

$$E_d = -(246 \pm 24) \text{ kJ/mol} \quad (5.1)$$

bestimmt [173]. Im Vergleich mit der semi-empirischen Vorhersage aus [174] zu  $E_{d\text{-semi}} = 279 \text{ kJ/mol}$  und mit dem aus einem Chromatografie-Experiment [175] extrahierten Wert von  $E_{d\text{-chrom}} = 258 \text{ kJ/mol}$  liegen beide Vergleichswerte in Übereinstimmung mit dem hier angegebenen Wert.

In [173] wird zudem die Freisetzungstemperatur von Nobelium mit  $T = 1350 \pm 20 \text{ K}$  angegeben. Dieser Wert wird im Folgenden als Richtwert für die Temperatur des Tantaldrahts angesehen.

### 5.1.2 Suche nach atomaren Linien in $^{254}\text{No}$ in 2007

Basierend auf den verfügbaren theoretischen Vorhersagen aus Abbildung 2.8 und der erfolgreichen Bestimmung der Desorptionsenthalpie von Nobelium von Tantal (vgl. Kapitel 5.1.1) wurde im August 2007 das erste Mal die RADRIS-Methode (vgl. Kapitel 2.5.4) in einer Puffergaszelle (beschrieben in [35]) zur Suche des atomaren Übergangs vom Grundzustand  $5f^{14} 7s^2 \text{ } ^1S_0$  in den angeregten Zustand  $5f^{14} 7s7p \text{ } ^1P_1$  in  $^{254}\text{No}$  eingesetzt.

Der Schwerpunkt der Scans wurde auf den Bereich der MCDF-Rechnungen aus [4] gelegt, die den Singulett-P Zustand bei einer Anregungswellenzahl  $\nu_{1\text{-sp}} \approx 27100 \text{ cm}^{-1}$  bzw.  $\nu_{1\text{-sp}} \approx 28300 \text{ cm}^{-1}$  vorhersagen, wobei mit den Farbstofflasern in einem Wellenzahlenbereich von 25900 bis 28260  $\text{cm}^{-1}$  und mit dem OPO-System von 28040 bis 31000  $\text{cm}^{-1}$  [173] gescannt wurde. Innerhalb einer Gesamtmesszeit von 38 Stunden, die für die Niveausuche in Nobelium-254 aufgewendet wurde, sind 21 Ereignisse auf dem Detektor registriert worden, die eindeutig dem Alpha-Zerfall des Nobeliumisotops  $^{254}\text{No}$  zugeordnet werden konnten [173]. Diese Ereignisse traten jedoch statistisch verteilt auf und es konnte keine Anhäufung an einer bestimmten Wellenzahl, wie es im Falle einer atomaren Resonanz zu erwarten wäre, festgestellt werden [173].

## 5.2 Experimente an Nobelium 2014 und 2015

Nach vorbereitenden Messungen, die in Kapitel 5.2.1 beschrieben werden, wurde die Suche nach dem Singulett-P Zustand im Rahmen dieser Arbeit 2014 und 2015 fortgesetzt (vgl. Kapitel 5.2.2). und erfolgreich gefunden und charakterisiert. Dies wird in Kapitel 5.2.3 beschrieben. Zusätzlich wird die Effizienz der Puffergaszelle in Kapitel 5.2.8 bestimmt sowie mit Hilfe eines gefundenen Rydbergzustands eine Abschätzung des Ionisationspotentials in Kapitel 5.2.6 gegeben. Einen Teil der diesem Kapitel gezeigten Resultate werden in gekürzter Form in [176] zusätzlich veröffentlicht. Sofern nicht ausdrücklich anders erwähnt,

werden alle gemessenen Mengen an  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfällen auf einen Strahlstrom von  $1\mu\text{A}_p$  normiert.

### 5.2.1 Vorbereitende Messungen

In diesem Kapitel werden die vorbereitenden Experimente, die zur Optimierung der Messmethode für Nobelium notwendig sind, zusammengefasst. Dabei wurden zu Beginn die Fusionsprodukte zur genauen Identifikation auf dem oberen PIPS-Detektor der Puffergaszelle gesammelt und anschliessend wurde die optimale Degradierfolienkonfiguration bzw. Puffergasdruck ermittelt. Den Abschluss dieses Kapitels markiert eine Abschätzung der als geladene Ionen gestoppten  $^{254}\text{No}$  - Kerne innerhalb der Puffergaszelle.

#### Identifizierung der gesammelten Fusionsprodukte auf dem Detektor

Aufgrund der geringen Produktionsrate im Bereich von einigen Atomen pro Sekunde von  $^{254}\text{No}$  ist die Optimierung der Position der gestoppten Nobeliumkerne innerhalb der gasgefüllten Puffergaszelle von enormer Wichtigkeit. Für Diagnosezwecke muss der verlustfreie Transport auf den PIPS Detektor zur Bestimmung der für das Experiment verfügbaren Menge an Fusionsprodukten garantiert sein. Daher wurden zur Verifizierung der Transporteffizienz in einer Messung die einkommenden Fusionsprodukte unter Verwendung der in Tabelle 3.1 angegebenen Elektrodenpotentiale der Bemerkung **Potentialkonfiguration Detektor** auf den Detektor transportiert. Abbildung 5.1 zeigt ein typisches Zerfallsspektrum, welches bei einer solchen Messung entsteht. Die korrekte Zuordnung wurde durch die Alphaenergien der Zerfallskette aus der Literatur vorgenommen, während die exakte Kalibration mit Hilfe der Software Origin von OriginLab durchgeführt wurde. Hierfür wurden die einzel-

Tabelle 5.1: Eingetragen sind die Zerfallseigenschaften des Isotops  $^{254}\text{No}$  und seine Töchterzerfälle von  $^{250}\text{Fm}$  und  $^{246}\text{Cf}$ .

Isotop	$T_{1/2}$ des Isotops	$\alpha$ -Energie [MeV]	$\alpha$ -Zerfallswahrscheinlichkeit	Referenz
$^{254}\text{No}$	51 s	8,086	0,9	[41]
$^{250}\text{Fm}$	30 min	7,435 / 7,396	0,75 / 0,15	[177]
$^{246}\text{Cf}$	35,7 h	6,750 / 6,7082	0,793 / 0,206	[178]

nen Linien mit einer exponentiell modulierten Gaußkurve angepasst und der Mittelpunkt der jeweiligen Datenanpassung gegenüber den Literaturwerten der  $\alpha$ -Zerfallsenergie von  $^{254}\text{No}$ ,  $^{250}\text{Fm}$ ,  $^{246}\text{Cf}$  aufgetragen. Aus einer linearen Datenanpassung ergibt sich der Konversionsfaktor der Spannungssignale, die mit der Datenaufnahme ausgelesen wurden, zur  $\alpha$ -Zerfallsenergie des jeweiligen Isotops. Für Nobelium wurde ein Bereich von 7,6 - 8,2 MeV zugeordnet. Innerhalb dieses Bereiches wurden 177  $^{254}\text{No}$  Zerfälle während einer Messzeit von 300 s registriert. Dies entspricht einer registrierten Rate von  $R_{\text{No}-\alpha} = 0,59/\text{s}$ . Durchgeführt wurde diese Messung bei einem Strahlstrom von  $550\text{ nA}_p$ . Ebenfalls in Abbildung 5.1

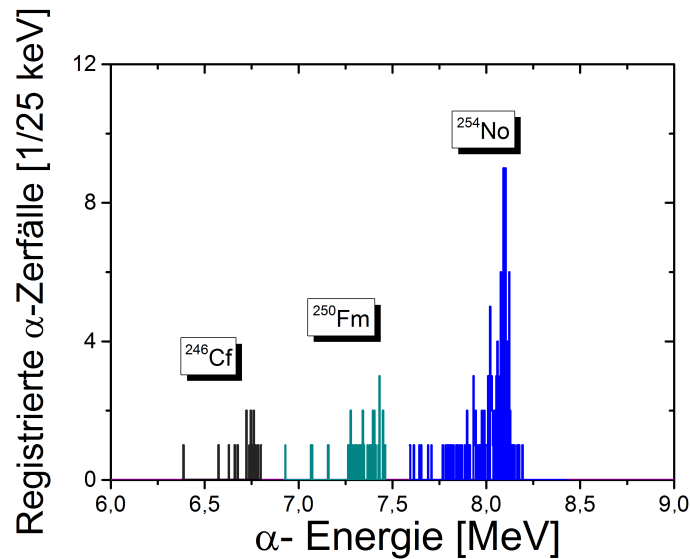


Abbildung 5.1:  $\alpha$ -Zerfallsspektrum der im Gas gestoppten und direkt auf den PIPS-Detektor abgesaugten  $^{254}\text{No}$  Atome und deren Töchter. Das Spektrum wurde bei 95 mbar Argon und einer Messzeit von 300 s aufgenommen. Alle  $\alpha$ -Zerfälle innerhalb eines Bereiches mit den Grenzen 7,6 und 8,2 MeV (blau markierte Datenpunkte) wurden dem Isotop  $^{254}\text{No}$  zugeordnet.

zu sehen sind die  $\alpha$ -Zerfälle von Fermium und Californium. Zur Bestimmung des Auflösungsvermögens des Detektors muss man beachten, dass auch Zerfälle der radioaktiven Kerne auf dem PIPS-Detektor registriert werden, deren emittiertes  $\alpha$ -Teilchen nicht senkrecht, aber dennoch im abgedeckten Raumwinkelbereich des PIPS-Detektors mit  $\epsilon_{\text{PIPS}} = 0,4$  (vgl. Kapitel 3.2) liegt. Da die  $\alpha$ -Teilchen somit die Schutzfolie des Detektors in einem schiefen Winkel durchqueren und dementsprechend eine längere Strecke durch das Puffergas fliegen, verlieren diese mehr Energie auf dem Weg auf die Detektor und erzeugen somit weniger der  $\alpha$ -Energie äquivalente Ladung.

#### Bestimmung der Stoppverteilung in Abhängigkeit der Abbremsfolien und des Puffergasdrucks

Einerseits sollen alle  $^{254}\text{No}$ -Ionen innerhalb des Volumens zwischen dem Eintrittsfenster und dem Filament ihre kinetische Energie verlieren, zum anderen müssen mögliche Verluste durch das Sammeln der  $^{254}\text{No}$ -Ionen auf den Seitenflächen des Filamentdrahts bzw. auf den Befestigungshülsen minimiert werden. Die Energie des einfallenden Strahls lässt sich einerseits durch Abbremsfolien verschiedener Dicken und andererseits durch Variation des Puffergasdrucks innerhalb der Puffergaszelle effizient reduzieren. Als Abbremsfolien stehen neben der auf dem Eintrittsfenster permanent aufgespannten Mylar-Folie (vgl. Ab-

schnitt 3.2) 3 weitere Folien aus Mylar mit einer Dicke von 1, 1,5 und 4  $\mu\text{m}$ , die einzeln oder in Kombination in die Strahlebene gefahren werden können, zur Verfügung. Für die Optimierung wurde die Menge an  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfällen auf dem PIPS-Detektor in Abhängigkeit der verwendeten Abbremsfolien bei einem Puffergasdruck von 95 mbar für jeweils 600 Sekunden gemessen. Anschließend wurde für diese Kombination aus Abbremsfolien der Gasdruck mit einer Schrittweite von 5 mbar verändert und die entsprechende Anzahl an  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfällen registriert. Grafik 5.2 zeigt die Resultate der Messungen, aus denen sich

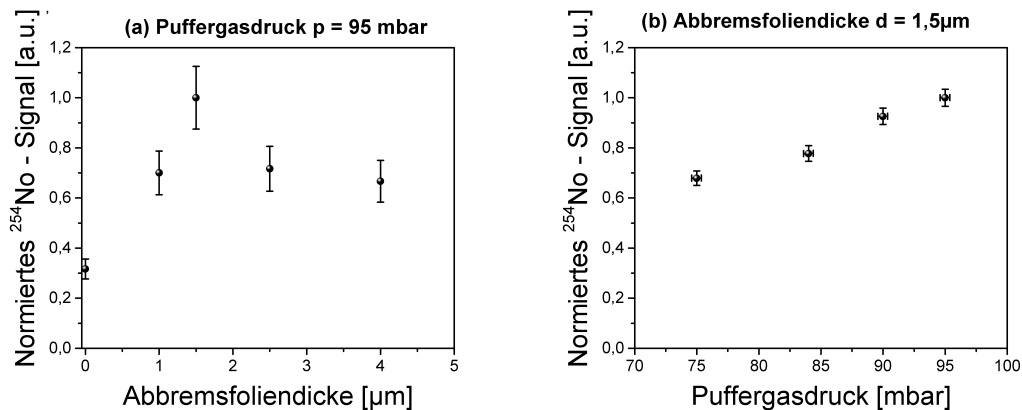


Abbildung 5.2: Normierte Menge an  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfällen für verschiedene Abbremsfolien-Kombinationen (a) und Puffergasdruck (b). Jeweils über 600 Sekunden wurden die gestoppten Nobeliumionen auf dem Detektor aufgesammelt und die Alphazerfälle registriert. Als Eintrittsfenster wurde eine Dicke von  $3,5\mu\text{m}$  verwendet. Diese ist in dieser Darstellung nicht miteingerechnet.

eine optimale Abbremsfoliendicke von 1,5  $\mu\text{m}$  bei einem Puffergasdruck von 95 mbar ergibt. Bei dieser Kombination aus Abbremsfoliendicke und Puffergasdruck wurde die höchste Menge an  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfällen auf dem PIPS-Detektor registriert, sodass im Umkehrschluss die Transportverluste nach dem Abstoppen der  $^{254}\text{No}$  - Ionen minimal sind. Die logische Schlussfolgerung ist, dass die  $^{254}\text{No}$  - Ionen in der Nähe der geometrischen Mitte der Puffergaszelle gestoppt werden. Simulationen mit dem Programm SRIM zur Bestimmung der Eindringtiefe in die Puffergaszelle bestätigen diese Annahme (vgl. Abschnitt 4.1). Eine Verringerung des Gasdrucks auf 75 mbar resultiert in einer Menge an  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfällen, die etwa 68% der ursprünglich registrierten Anzahl an  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfällen entspricht. Durch den geringeren Gasdruck werden die  $^{254}\text{No}$  - Ionen tiefer im Volumen der Puffergaszelle gestoppt. Dies hat zur Folge, dass ein Teil der  $^{254}\text{No}$  - Ionen nicht mehr optimal auf den Detektor transportiert werden können und somit verloren gehen.

Schaut man sich den Verlauf der Anzahl an  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfällen gegenüber des Puffergasdruckes an, könnte eine weitere Erhöhung des Gasdrucks auf über 95 mbar eine weitere Verbesserung der Transportbedingungen auf den PIPS-Detektor bewirken. Aufgrund der Ver-

wendung einer dünnen Mylarfolie von  $3.5\ \mu\text{m}$  als Eintrittsfenster zur Trennung vom Vakuum von SHIP ist die Höhe des Puffergasdrucks auf unter 100 mbar innerhalb der Puffergaszelle limitiert. Eine Abbremsfoliendicke von  $1,5\ \mu\text{m}$  zusätzlich zu den  $3,5\ \mu\text{m}$  des Eintrittsfensters bei einem Gasdruck von 95 mbar sind also die bestmöglichen Werte, die angewendet werden können und werden somit bei den zukünftigen Messungen als Ausgangspunkt verwendet.

### Abschätzung der als geladene Ionen gestoppten Nobeliumkerne in Argon

Aus dem Verhältnis an detektierten  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfällen auf dem PIPS-Detektor zu den an der Puffergaszelle ankommenden  $^{254}\text{No}$  - Ionen kann der Anteil der als geladen gestoppten  $^{254}\text{No}$  - Ionen bei Anwesenheit des Puffergas Argon in der Puffergaszelle abgeschätzt werden. Berücksichtigt werden muss dabei die Transmissionseffizienz des Eintrittsfensters, Verluste durch Kollisionen der Nobeliumkerne mit den Wänden und Elektroden, die Transporteffizienz der elektrischen Felder auf den PIPS-Detektor und die Detektionseffizienz des PIPS-Detektors.

Die Messung ist somit unabhängig von der Fähigkeit, die Nobeliumkerne auf dem Tantaldraht zu sammeln, erneut abzukondensieren und resonant durch Laserstrahlung zu ionisieren und lässt sich beschreiben mit dem Zusammenhang

$$R_{\text{SHIP}}^{\text{Ion}} = \frac{R_{\text{PIPS}}^{\alpha}}{\epsilon_{\text{Fenster}} \cdot \epsilon_{\text{Stop}} \cdot \epsilon_{1-\text{neutr.}} \cdot \epsilon_{\text{detekt}}} . \quad (5.2)$$

Hierbei sind  $R_{\text{SHIP}}^{\text{Ion}} = 6,14/\text{s}$  die Ionenrate in Fokalebene und  $R_{\text{PIPS}}^{\alpha} = 1,57/\text{s}$  die  $\alpha$ -Aktivität auf dem PIPS-Detektor, bezogen auf  $1 \mu\text{A}_p$ . Die Beschreibung der Teileffizienzen ist bereits in Ytterbium Kapitel erfolgt und sind zusammengefasst in Tabelle 4.4.

Gleichung 5.2 lässt sich einfach nach  $\epsilon_{1-\text{Neutr.}}$  umstellen:

$$\epsilon_{1-\text{neutr.}} = \frac{R_{\text{PIPS}}^{\alpha}}{\epsilon_{\text{Fenster}} \cdot \epsilon_{\text{Stop}} \cdot R_{\text{SHIP}}^{\text{Ion}} \cdot \epsilon_{\text{detekt}}} \quad (5.3)$$

Die Bestimmung des Fehlers folgt dem Gausschen Fortpflanzungsgesetz. Einsetzen der Werte in Gleichung 5.3 ergibt

$$\epsilon_{1-\text{neutr.}} = (93,5 \pm 6,5)\% \quad (5.4)$$

Im Durchschnitt behalten also 93,5% der Nobeliumkerne ihren geladenen Zustand beim Stoppen in Argon 6.0 und sind somit weiterhin für das Experiment verfügbar.

### 5.2.2 Suche nach atomaren Zuständen in $^{254}\text{No}$

Die atomare Niveausuche in Nobelium-254 wurde in 2014 und 2015 in einem Anregungsschema, das in Abbildung 5.3 dargestellt ist, mit dem in Kapitel 3.2 und Kapitel 3.3 beschriebenen experimentellen Aufbau durchgeführt. Dabei wurde der Scanbereich basierend auf den theoretischen Vorhersagen aus Abbildung 2.8 in zwei Bereiche unterteilt. Mit den vier Farbstofflasern wurde die Suche nach Übergängen im Bereich von  $28887 \text{ cm}^{-1} \leq \bar{\nu}_1 \leq 30590 \text{ cm}^{-1}$  durchgeführt. Ein besonderes Augenmerk wurde dabei im Speziellen auf den Bereich  $29300 \text{ cm}^{-1} \leq \bar{\nu}_1 \leq 31450 \text{ cm}^{-1}$  gelegt, da hier die meisten theoretischen Vorhersagen innerhalb ihrer Fehlergrenzen (vgl. 2.4) überlappen. Als Farbstoffe kamen 2,2"-Dimethyl-p-terphenyl (DMT) und p-Terphenyl (PTP) mit einer jeweiligen Konversionseffizienz von bis zu 4% bzw. 8 % in diesem Energiebereich zum Einsatz [99]. Der obere Wellenzahlenbereich wurde mit einem OPO System abgedeckt, der von  $30500 \text{ cm}^{-1} \leq$

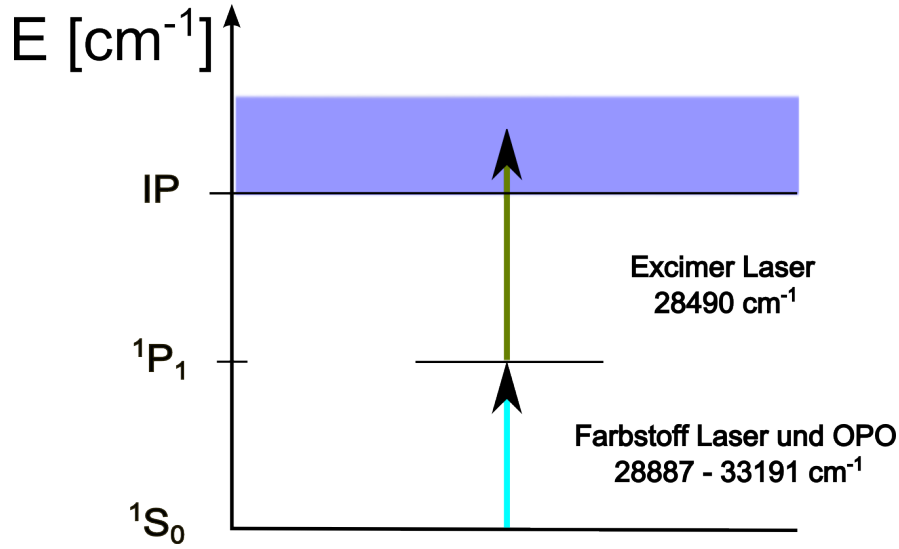


Abbildung 5.3: Anregungsschema zur Niveausuche in Nobelium. Auf der Suche nach der atomaren Linie wurden die Farbstofflaser im Bereich um  $\bar{\nu}_1 = 29700 \text{ cm}^{-1}$  und das OPO System im Bereich um  $\bar{\nu}_1 = 31800 \text{ cm}^{-1}$  durchgestimmt.

$\bar{\nu}_1 \leq 33191 \text{ cm}^{-1}$  durchgestimmt wurde. Der Ionisationsschritt bei einer Wellenzahl von  $\bar{\nu}_2 = 28490 \text{ cm}^{-1}$  wurde von einem weiteren Excimer Laser bereitgestellt. Während der Messungen wurden die Pulsintensitäten an der Messapparatur für die Farbstofflaser zu  $2 \frac{\mu\text{J}}{\text{Puls}\cdot\text{cm}^2} \leq I_{\bar{\nu}_1} \leq 80 \frac{\mu\text{J}}{\text{Puls}\cdot\text{cm}^2}$ , das OPO-Systems zu  $I_{\bar{\nu}_1} \approx 70 \frac{\mu\text{J}}{\text{Puls}\cdot\text{cm}^2}$  und des Excimerlasers zu  $I_{\bar{\nu}_2} \approx 4000 \frac{\mu\text{J}}{\text{Puls}\cdot\text{cm}^2}$  bestimmt.

Zur Aufrechterhaltung der Nachweiseffizienz der Messapparatur wurde der Gesamtbereich in viele kleine Intervalle von  $100 \text{ cm}^{-1}$  aufgeteilt, so dass in regelmässigen Abständen zwischen den einzelnen Scans das Tantalfilament durch Aufheizen bei einer konstanten Heiztemperatur von  $1800 \text{ }^\circ\text{C}$  für etwa 30 Minuten unter Hochvakuumbedingungen ( $p < 10^5 \text{ mbar}$ ) gereinigt werden konnte. Für die Messungen wurde die Abbremsfoliendicke und der Puffergasdruck aus 5.2.1 angewendet. Die durchschnittlich registrierte Untergrundrate während der Suche nach dem Singulett-P Zustand im Jahr 2014 ist dabei der Quotient von allen mit dem RADRIS-Zyklus (vgl. Kapitel 2.5.4) detektierten Nobelium- $\alpha$ -Zerfällen  $N_{\text{No}}$  in der Gesamtmesszeit  $t_{\text{mess}}$

$$R_{\text{back-2014}} = \frac{N_{\text{No}}}{t_{\text{mess}}} = (5,11 \pm 0,59) \cdot 10^{-3} / \text{s}. \quad (5.5)$$

Als Grund für die hohe Untergrundrate wurde die Filamenttemperatur von  $T_{\text{fil}} \approx 910 \text{ }^\circ\text{C}$  während der Sammelphase festgestellt, welche eine erhöhte Oberflächenionisation der Nobeliumatome auf dem Tantaldraht verursacht hat. Eine erhebliche Reduktion der Untergrundrate konnte während der Suche nach dem Singulett-P Zustand im Jahr 2015 mit Ab-

senken der Filamenttemperatur in der Sammelphase auf unter  $T_{\text{fil}} \approx 600^\circ\text{C}$  erreicht werden. Insgesamt wurde eine Untergrundrate von

$$R_{\text{back-2015}} = \frac{N_{\text{No}}}{t_{\text{mess}}} = (1,56 \pm 0,32) \cdot 10^{-3} / \text{s} \quad (5.6)$$

festgestellt. In einem Suchlauf innerhalb des Wellenzahlenbereichs  $29940 \text{ cm}^{-1} \leq \bar{\nu}_1 \leq 29980 \text{ cm}^{-1}$  konnte dann zweifelsfrei bei einer Anregungswellenzahl von  $\bar{\nu}_1 \approx 29961 \text{ cm}^{-1}$  eine signifikante und wellenzahlabhängige Erhöhung der Zählrate von  $^{254}\text{No}$  festgestellt werden. Hierbei wurde innerhalb des Scans eine Nobelium Zählrate von  $R_{\text{Res}}$  auf dem PIPS Detektor

$$R_{\text{Res}} = \frac{N_{\text{No-Res}}}{t_{\text{mess}}} = (1,92 \pm 0,04) \cdot 10^{-1} / \text{s}. \quad (5.7)$$

registriert. Es ergibt sich ein Signal-Untergrund Verhältnis (SUV) von

$$\text{SUV} = \frac{R_{\text{Res}}}{R_{\text{back-2015}}} = 123,87 \approx 124 \quad (5.8)$$

Zum ersten Mal konnte also in Nobelium ein atomarer Übergang experimentell nachgewiesen werden. Neben dieser gefundenen Linie wurden im Einklang mit den theoretischen Vorhersagen in dem durchgestimmten Anregungswellenzahlenbereich  $28887 \text{ cm}^{-1} \leq \bar{\nu}_1 \leq 33191 \text{ cm}^{-1}$  keine weiteren optischen Übergänge gefunden.

### 5.2.3 Charakterisierung des atomaren Übergangs

Die Charakterisierung des atomaren Übergangs bei einer Anregungswellenzahl von  $\bar{\nu}_1 \approx 29961 \text{ cm}^{-1}$  beinhaltet neben der genauen Lokalisierung des atomaren Zustands durch eine feinmaschige Verstimmung der Frequenz des Anregungslasers und der daraus folgenden Klassifizierung des gefundenen atomaren Übergangs die Optimierung der experimentellen Methode und die Bestimmung des Einstein-Koeffizienten  $A_{ki}$  mit Messungen der Sättigungscharakteristik des atomaren Zustands. Zusätzlich wird die Lebensdauer  $\tau_{ki}$  des atomaren Zustands gemessen und mit dem erhaltenen Wert aus der Sättigungscharakteristik des atomaren Zustands verglichen.

#### Klassifizierung des atomaren Zustands

Die Resonanz wurde unter Verwendung eines Farbstofflasers ohne Intracavity-Etalon und mit einer Laserbreite von etwa 5,5 GHz aufgenommen. Zur Ionisation wurde ein zweiter nichtresonanter Laser bei 351 nm verwendet. Die Laserpulsintensitäten lagen hierbei für den ersten Schritt nach der Glasfaser bei  $I_{\bar{\nu}_1} = 63 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  und vor der Messapparatur für den zweiten nichtresonanten Schritt bei  $I_{\bar{\nu}_2} = 4 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ . Insgesamt wurden in einem Wellenzahlenbereich von 29959 - 29964  $\text{cm}^{-1}$  an 10 Messpunkten für eine Gesamtzeit von jeweils 300 s die Menge an  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfällen pro Wellenzahl aufsummiert und auf einen einheitlichen Strahlstrom normiert. Ein wichtiger Aspekt der genauen Vermessung des ato-



maren Übergangs war die notwendige Wartezeit von 300 s zwischen den einzelnen Messungen, da es sonst durch Aufsummierungen von  $^{254}\text{No}$ -Zerfällen aus den vorangegangenen Messungen zu einer Verfälschung der Resonanzposition und -breite kommt. Eine Wartezeit von 300 s entspricht 5,5 Halbwertszeiten von  $^{254}\text{No}$ .

Grafik 5.4 zeigt die normierte Anzahl an  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfällen gegenüber der Wellenzahl des eingestrahlten Anregungslasers für den ersten Schritt. Die Datenpunkte wurden mit einem Voigt-Profil angepasst und daraus der Resonanzmittelpunkt und die Halbwertsbreite extrahiert. Dabei wurde der Mittelpunkt der Resonanz zu  $\bar{\nu}_{\text{center}} = (29961,46 \pm 0,04) \text{ cm}^{-1}$  bei

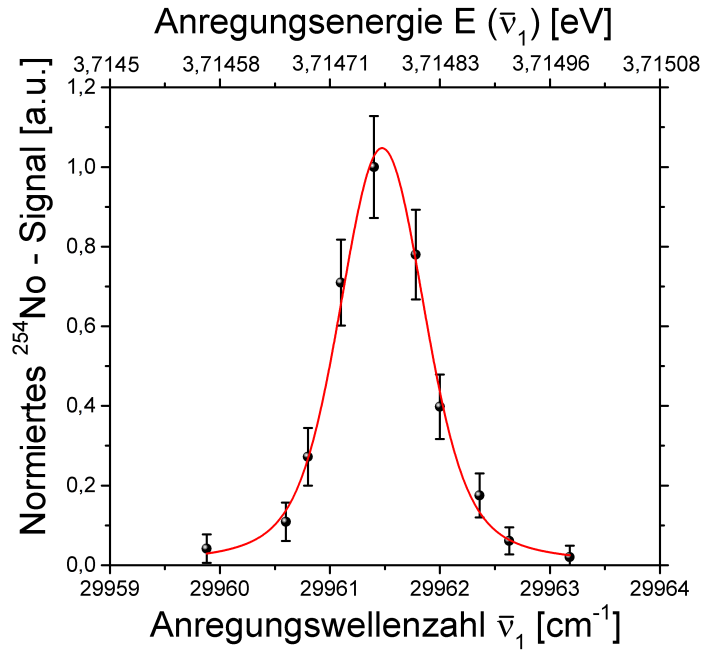


Abbildung 5.4: Aufnahme der Resonanz ohne Intracavity-Etalon. Nach einer Messung für jeweils 300 Sekunden wurde die gleiche Zeit für den Zerfall aus vorangegangenen Messungen abgewartet. Gemessen wurde mit einer Laserpulsintensität von  $I_{\bar{\nu}_1} = 63 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  für den ersten Anregungsschritt und  $I_{\bar{\nu}_2} = 4 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  für den nichtresonanten zweiten Schritt. An die Datenpunkte wurde ein Voigtprofil mit einem Mittelpunkt  $29961,46 \pm 0,04 \text{ cm}^{-1}$  und einer Halbwertsbreite von  $27,6 \pm 1,2 \text{ GHz}$  angepasst. Die Datenpunkte wurden auf die maximal erreichte Anzahl registrierter  $^{254}\text{No}$ -Zerfälle pro Wellenzahl normiert.

einer Halbwertsbreite von  $\Delta \bar{\nu}_{\text{center}} = (0,92 \pm 0,04) \text{ cm}^{-1} = (27,6 \pm 1,2) \text{ GHz}$  bestimmt. Sowohl die Beschreibung der Linienform durch eine Voigtverteilung, als auch die deutlich über der Laserbandbreite liegende Halbwertsbreite deuten darauf hin, dass der Übergang mit der verwendeten Laserleistung bereits deutlich gesättigt ist. Diese Schlussfolgerung wird durch Sättigungsmessungen bestätigt, die in Kapitel 5.2.4 und 5.2.5 detailliert diskutiert werden.

Im Folgenden wird mit Hilfe der experimentellen Daten zur Lage des atomaren Übergangs eine Termklassifizierung vorgenommen. Aufgrund der fehlenden Vergleichsmöglichkeit zu anderen experimentellen Daten über die Klassifizierung der gefundenen atomaren Linie in Nobelium werden an dieser Stelle die theoretischen Vorhersagen aus Kapitel 2.4.1 zusammenfassend in Tabelle 5.2 mit den experimentellen Daten verglichen.

Im Falle von Nobelium gibt es nur eine Handvoll von optisch anregbaren Übergängen, die zur Klassifizierung herangezogen werden können. Vergleicht man die Ergebnisse der theo-

**Tabelle 5.2:** Zusammenstellung der aus theoretischen Berechnungen bekannten atomaren Zustände, die optisch aus dem Grundzustand  $1S_0$  angeregt werden können. Die Tabelle enthält die Modellvorhersagen aus [4–8].

Atomare Linie	[5]	[7]	[8]	[4]	[4]	[6]
$7s^2 1S_0 \rightarrow 7s7p 1P_1 \quad \nu_1 [\text{cm}^{-1}]$	30056	30609	30304	28149	27100	30649
$7s^2 1S_0 \rightarrow 7s8p 1P_1 \quad \nu_1 [\text{cm}^{-1}]$	42285	–	42910	–	–	–
$7s^2 1S_0 \rightarrow 7s8p 3P_1 \quad \nu_1 [\text{cm}^{-1}]$	40700	–	41382	–	–	–
$7s^2 1S_0 \rightarrow 7s7p 3P_1 \quad \nu_1 [\text{cm}^{-1}]$	20454	21682	21042	–	—	18389

retischen Vorhersagen der aus dem Grundzustand  $7s^2 1S_0$  optisch anregbaren Übergänge (Auswahlregeln  $\Delta J = 0, \pm 1$  und  $J = 0 \rightarrow J = 0$  verboten), die in Tabelle 5.2 zusammengefasst sind, mit dem Resultat aus dem Experiment, so ergibt sich nur eine plausible Zuordnung. Einzig für den Zustand mit der Termbezeichnung  $[\text{Rn}]5f^{14} 7s7p 1P_1$  liegen die theoretischen Vorhersagen in guter Übereinstimmung mit der experimentell bestimmten Anregungswellenzahl des atomaren Übergangs. Die Anregungswellenzahl  $\bar{\nu}_1$  wird hierbei von allen RCC-Modellen von Borschevsky und Dzuba [5, 8] und der MDCF-Modelle von Indelicato und Liu [6, 7] innerhalb der Fehlerangaben gut widergegeben. Lediglich die Modellannahmen von Fritzsche [59] liegen weit entfernt vom experimentell bestimmten Wert. Der Grund für diese Abweichung liegt darin begründet, dass eine nicht ausreichende Anzahl von Basissätzen, die zur ausreichenden Erfassung der Elektronenkorrelationen notwendig sind, berücksichtigt wurden [179]. Bei dem gefundenen atomaren Übergang handelt es sich also um den gesuchten Singulett-P Zustand.

### Effizienzoptimierung der RADRIS-Methode für Nobelium

Im nächsten Schritt wurde anhand des Singulett-P Zustands die Effizienz der Methode optimiert. Dafür wurde der Einfluss der Filamenttemperatur, des Puffergasdrucks, der Einfluss der Filamentreinigung, beschrieben in Abschnitt 5.2.2, und die Experimentiermöglichkeiten an Nobelium+ mit einem Filament aus Wolfram studiert. Während diesen Messungen wurden die Laserpulsintensitäten zu  $I_{\bar{\nu}_1} = 4 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  für den ersten Anregungsschritt nach der Glasfaser und  $I_{\bar{\nu}_2} = 4,11 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  für den zweiten nichtresonanten Anregungsschritt vor der Messapparatur bestimmt. Für die Messungen wurde die Konfiguration der Abbremsfolien und des Puffergasdrucks aus Kapitel 5.2.1 verwendet.

Abbildung 5.5(a) zeigt die normierte Menge an  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfällen gegenüber der Tempe-

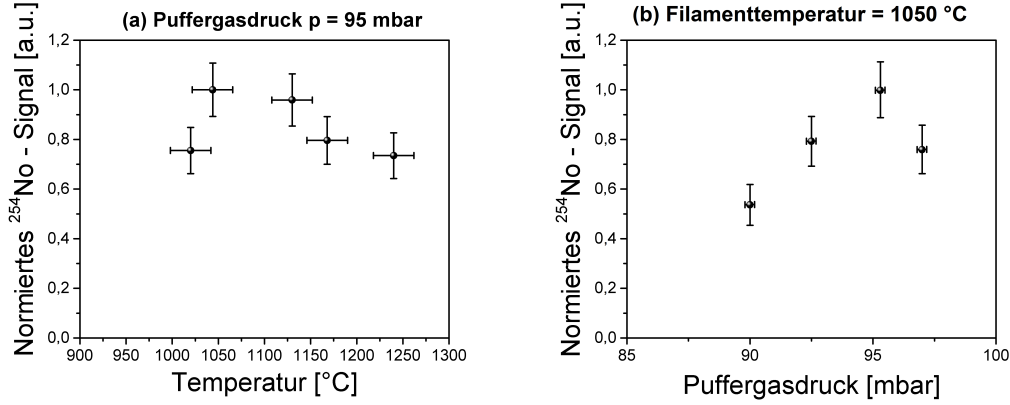


Abbildung 5.5: Anzahl der im PIPS Detektor registrierten  $^{254}\text{No}$ - $\alpha$  Zerfälle nach RIS an Nobelium als Funktion von Druck und Temperatur. Bildteil a) auf der linken Seite zeigt die Abhängigkeit der registrierten  $^{254}\text{No}$ - $\alpha$  Zerfälle von der Filamenttemperatur. Der Druck wurde während der Messung bei 95 mbar stabilisiert. Zum Studium der Druckabhängigkeit in Bildteil b) wurde die Temperatur bei 1050 °C konstant gehalten. Die Laserpulsintensitäten wurden zu  $I_{\bar{\nu}_1} = 4 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  für den ersten Anregungsschritt und  $I_{\bar{\nu}_2} = 4,11 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  für den nichtresonanten zweiten Schritt bestimmt. Die Datenpunkte wurden in beiden Messungen auf die maximal erreichte Anzahl registrierter  $^{254}\text{No}$ -Zerfälle pro Wellenzahl normiert.

ratur. Mit Erreichen einer Filamenttemperatur von  $T \geq 1025^\circ\text{C}$  steigt die Zählrate auf dem PIPS-Detektor merklich an mit einem Maximum zwischen 1050 und 1130 °C. Mit Überschreiten dieser Filamenttemperatur sinkt die Rate mit einer weiteren Erhöhung der Filamenttemperatur langsam aber stetig ab. Dies kann mit einem grösseren Wärmeeintrag in das Gasvolumen erklärt werden, welcher konvektive Verschiebungen und die Diffusion der Atomwolke forciert und somit den Überlapp von abgedampften Atomen zu dem Laserinteraktionsvolumen reduziert. Ein vergleichbares Verhalten wurde auch in Ytterbium beobachtet. (Siehe dafür auch in Kapitel 4.3.4).

In Abbildung 5.5(b) wird die normierte Menge an  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfällen in Abhängigkeit des Puffergasdrucks dargestellt. Während diesen Messungen wurde die Temperatur bei 1050 °C konstant gehalten. Ein Maximum befindet sich bei 95 mbar, während eine Erniedrigung bzw. Erhöhung im Rahmen von 5 mbar bereits eine statistisch signifikante Reduktion der gemessenen Zählrate zur Folge hat. Erklärt werden kann dies mit einer geänderten Abstoppposition der Nobeliumkerne und der daraus resultierenden veränderten Aufsaugecharakteristik auf den Filamentdraht. Dadurch wird auch die Position bei Evaporation der Atome in das

Gasvolumen beeinflusst und in Folge dessen auch der Überlapp der Atomwolke und dem Laserinteraktionsvolumen.

Die Ergebnisse der Druckmessungen lassen sich mit den Resultaten der Druckabhängigkeit beim direkten Transport der  $^{254}\text{No}$ -Ionen auf den Detektor aus Abschnitt 5.2.1 vergleichen, da auch dort die maximale Menge an  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfällen bei einem Gasdruck von 95 mbar registriert wurde. Die Schlussfolgerung daraus ist, dass für diesen Gasdruck die Position der  $^{254}\text{No}$ -Ionen innerhalb der Puffergaszelle sowohl für einen nahezu verlustfreien Transport auf den Detektor (vgl. Kap 5.2.1), aber auch zum effizienten Sammeln auf dem Tantaldraht optimal ist.

In einem weiteren Schritt der Effizienzoptimierung soll gezeigt werden, dass durch die in Absatz 5.2.2 beschriebene Maßnahme zur Reinigung des Tantaldrahts zeitweise die Gesamteffizienz signifikant gesteigert werden kann. Zum direkten Vergleich wurden daher die registrierten  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfälle  $N_{\text{No}}$  nach RIS an Nobelium direkt vor und nach dem Reinigungsprozess mit einer Messzeit von  $t_{\text{mess}} = 600$  s bestimmt. Die restlichen experimentellen Parameter wurden bei einer Filamenttemperatur von  $T_{\text{RIS}} = 1050$  °C aus Kapitel 5.2.1 entnommen. Vergleicht man die Messungen vor und nach dem Reinigungsprozess der Puf-

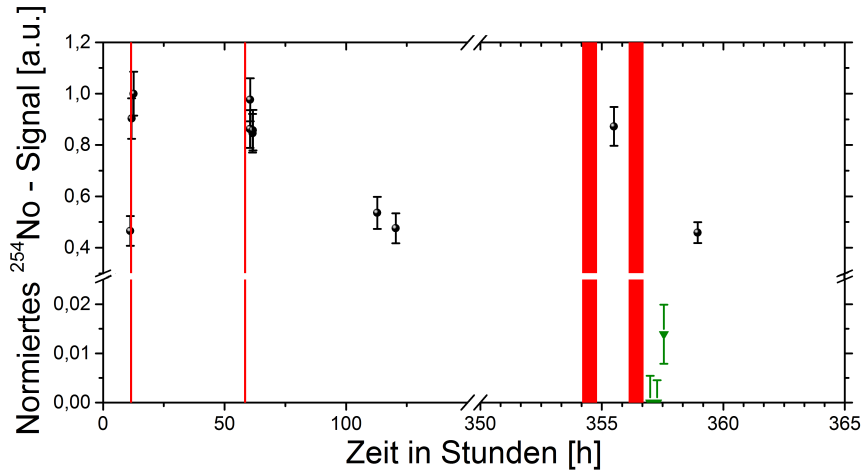


Abbildung 5.6: Normiertes  $^{254}\text{No}$ -Signal als Funktion der Zeit und in Abhängigkeit des Reinigungsprozesses des Fängerdrahts. Die roten Balken indizieren einen Reinigungsprozess mit einer Länge von 30 min, die schwarzen Kreise sind Messwerte mit Tantal als Drahtmaterial und die grünen Dreiecke stehen für Messungen mit Wolfram als Drahtmaterial. Die Laserpulsintensitäten wurden während den Messungen zu  $I_{\bar{\nu}_1} = 60 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  für den ersten Anregungsschritt und  $I_{\bar{\nu}_2} = 4 \text{mJ}/\text{cm}^2$  für den nichtresonanten Schritt bestimmt. Die Filamenttemperatur lag bei 1050 °C und der Gasdruck innerhalb der Puffergaszelle wurde auf 95 mbar fixiert. Die Anregungswellenzahlen wurden auf  $\bar{\nu}_1 = 29961,46 \text{cm}^{-1}$  und  $\bar{\nu}_2 = 28490 \text{cm}^{-1}$  festgesetzt.

fergaszelle (siehe Abbildung 5.6) und des Tantaldrahts miteinander, so wurde eine Erhöhung um etwa einen Faktor zwei der auf dem PIPS-Detektor registrierten  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfälle festgestellt. Eine Verfälschung der Messwerte nach der Reinigung durch gesammelte Restaktivität der Messungen vor der Reinigung ist durch die Dauer des Reinigungsprozess von 30 min ausgeschlossen, da diese Zeit 32 Halbwertszeiten von  $^{254}\text{No}$  entspricht und somit alle Nobeliumatome bereits zerfallen sind. Aufgrund regelmäßiger Überwachung der restlichen Parameter wie Filamenttemperatur, Laserpulsintensität und -überlapp, Puffergasdruck und Produktionsrate können Schwankungen der Parameter zur Erklärung der erhöhten RIS Rate nach Filamentausheizen ausgeschlossen werden, d.h. die signifikante Steigerung der auf dem PIPS Detektor registrierten  $^{254}\text{No}$ - Zerfälle liegt in der Reinigung des Tantaldrahts begründet. Diese vergleichsweise hohe Menge an registrierten  $^{254}\text{No}$  - Zerfällen konnte jedoch nur für wenige Stunden gehalten werden und nähert sich asymptotisch einem Wert an, der mit  $0,54 \cdot N_{\max}$  etwa einem Faktor 2 unterhalb der maximal registrierten  $^{254}\text{No}$  - Zerfällen  $N_{\max}$  liegt.

Tantal gehört zu der Gruppe der Übergangsmetalle und bildet bei Raumtemperatur eine passivierende  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ -Schicht [180]. Zum Ausheizprozess wird das Filament für 30 Minuten auf Temperaturen von  $1800^\circ\text{C}$  gebracht. In diesem Bereich findet laut [180] eine massive Freisetzung der oberen oxidbelegten Schichten des Tantaldrahts statt, wobei die Sauerstoff-Tantal-Verbindung in Form von  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ,  $\text{TaO}$  und  $\text{TaO}_2$  abgedampft werden. Das Verhältnis von Sauerstoff zu Tantal ändert sich während eines solchen Heizprozesses grob gesagt laut [180] von etwa 6.5/1 zu 1/5 zugunsten von Tantal. Da Tantal in der Lage ist, Sauerstoff über mehrere Schichten hinaus [180] zu binden und zudem auch ein Teil des gebundenen Sauerstoffs in das Metall diffundiert [180], ist es möglich, Nobelium größtenteils atomar von einem Tantaldraht abzdampfen. Dabei ist die Sauerstoffaufnahme von Tantal direkt nach Messbeginn für eine Zeit von vermutlich 150 Min, in unserem Fall, stark erhöht. Da mit einem Heizpuls von  $1050^\circ\text{C}$  weniger Sauerstoff abgegeben als aufgenommen wird, nimmt der Anteil der Sauerstoffbedeckung mit der Zeit langsam zu. Dies würde die hohe Menge an registrierten  $^{254}\text{No}$  - Zerfällen am Anfang direkt nach dem Reinigungsprozess und den darauffolgenden sinkende RIS Raten hin zu einem konstanten Niveau (vgl. dazu Abbildung 5.6) erklären.

In einer weiteren Messreihe soll die Wahl von Tantal als Filamentmaterial untersucht werden. Dafür wurde ein Wechsel des Filamentdrahts vorgenommen und ein geometrisch identisch geformter Draht aus dem Material Wolfram mit einer Dicke von ebenfalls  $125\mu\text{m}$  eingebaut. Damit die Messergebnisse miteinander verglichen werden können, wurde der Wolframdraht mit der gleichen Reinigungsprozedur wie in Abschnitt 5.2.2 präpariert. Anschliessend wurde mit den gleichen experimentellen Parametern wie für Tantal die Menge an Nobeliumzerfällen  $N_{\text{No}}$  auf dem PIPS-Detektor nach RIS für eine Messzeit von 600s registriert. Abschliessend wurde die RADRIS-Methode erneut mit einem Tantaldraht angewendet. Die Ergebnisse dieser Messungen sind in Abbildung 5.6 zu sehen.

Trotz der gleichen Randbedingungen des Filamentdrahts und einer sukzessiven Erhöhung der Drahttemperatur bis zu einem Wert von  $T_{\text{Wolfram}} = 1900^\circ\text{C}$  bei der Nutzung des Wolf-

ramdrahts war die maximal gemessene  $\alpha$ -Aktivität von Nobelium auf dem PIPS-Detektor einen Faktor 100 kleiner verglichen mit dem Wert von den Messungen unter Nutzung von Tantal als Filamentmaterial und damit vergleichbar mit der durchschnittlichen Untergrundrate. Durch den direkten erneuten Einbau eines Tantaldrahts und der anschliessenden Reproduzierbarkeit der Ergebnisse mit Tantal als Filamentdrahts wurden andere Parameter wie die Laserpulsintensität und -überlapp, Puffergasdruck und die Produktionsrate von Nobelium als Grund des Misserfolgs ausgeschlossen. Die Oberfläche von Wolfram lässt sich im Vergleich zu Tantal komplett von Sauerstoff befreien, da bereits ab einer Temperatur von 1000°C eine massive Freisetzung von Wolfram-Sauerstoffverbindungen der Form  $W_xO_y$  stattfindet [181]. Mit Erreichen von Temperaturen oberhalb von 1300°C findet zusätzlich eine Abgabe von Sauerstoffmolekülen ( $O_2$ ) und atomar abgedampften Sauerstoff O statt. Nach der Reinigungsprozedur nimmt Wolfram ebenfalls wie Tantal Sauerstoff auf der Oberfläche des Filaments auf, wobei sich die Aufnahmekapazität von Wolfram vermutlich einem Sättigungsniveau asymptotisch nähert [182], währenddessen die Aufnahmekapazität für Tantal konstant über die Zeit zu sein scheint. Man würde also erwarten, dass die RADRIS-Methode an Nobelium mit einer reduzierten Effizienz im Vergleich zu Tantal verlaufen würde. Jedoch wurden selbst bei einer Filamenttemperatur von 1900°C eine Menge an  $^{254}\text{No}$  - Zerfälle im Bereich des durchschnittlichen Untergrunds gemessen. Bildungen von Oxidverbindungen mit Nobelium der Form  $\text{No}_x\text{O}_y$  sind nicht auszuschliessen, konnten aber in diesem Fall nicht nachgewiesen werden. Da sich Oxidverbindungen, sobald sie abgedampft wurden, durch die Anwendung von starken Lasern im UV-Bereich einfach ionisieren lassen. Man hätte also bei der Formation solcher Verbindung ebenfalls eine erhöhte Menge an  $^{254}\text{No}$  - Zerfällen sehen müssen. Die Erklärung eines solchen Sachverhalts kann einerseits die Chemisorption von Nobelium auf Wolfram sein und somit eine sehr starke Bindung der Nobeliumatome zu der Wolframoberfläche und andererseits die Diffusion der Nobeliumatome in den Wolframdraht sein, sodass die Nobeliumatome nicht mehr abgedampft werden können. Eine dritte Möglichkeit ist, dass sich Nobeliumoxidverbindungen formieren, diese aber aufgrund einer sehr hohen Abdampftemperatur selbst bei einer Drahttemperatur von 1900°C nicht von der Oberfläche des Wolframdrahts abgedampft werden. Zur Klärung dieses Sachverhalts muss in einem weiteren Experiment an Nobelium die Temperatur des Wolframdrahts weiter sukzessiv erhöht, damit zumindest die Möglichkeit der Oxidbildung bestätigt oder ausgeschlossen werden kann.

#### 5.2.4 Sättigungscharakteristik und Lebensdauer des Singulett-P Zustands

Einer der wesentlichen Schritte zur Charakterisierung des atomaren Übergangs zwischen zwei Zuständen ist die Bestimmung der Lebensdauer  $\tau_{ki}$  des angeregten Zustands. Hierbei gibt es zwei Ansätze zur Bestimmung der Lebensdauer. Der erste Ansatz (5.2.4.1) führt über die Betrachtung des Sättigungsverhaltens des Übergangs in den angeregten Zustand in Abhängigkeit der entsprechenden Photonenflussdichte  $\Psi_1$ . Aus dem Studium des Sättigungsverhaltens lässt sich der optische Wirkungsquerschnitt  $\sigma_1$  extrahieren, mit dem in bestimmten Grenzen der Einstein-Koeffizient  $A_{ki}$  für den spontanen Zerfall von  $|k\rangle$  nach

$|i\rangle$  bestimmt werden kann (vgl. Abschnitt 5.2.4.1). Eine andere experimentelle Methode (beschrieben in 5.2.4.2) zur Bestimmung der Lebensdauer  $\tau_{ki}$  besteht in der zeitlichen Verzögerung des zweiten Anregungsschrittes relativ zum ersten Anregungsschritt. Aus dieser Betrachtung lässt sich durch die Datenanpassung eines exponentiellen Zerfalls direkt die Lebensdauer des angeregten Zustands  $|k\rangle$  extrahieren. Im Folgenden werden beide Ansätze zum Studium der Lebensdauer des atomaren Zustands verfolgt und die Ergebnisse in Unterkapitel 5.2.4.3 diskutiert. In allen Messungen zur Sättigungscharakteristik und Lebensdauer des Singlett-P Zustands wurden die Anregungsschritte jeweils mit einer Repetitionsrate von 100 Hz in die Zelle eingeschossen. Die anderen experimentellen Randbedingungen wie Filamenttemperatur und Druck wurden aus Kapitel 5.2.3 übernommen.

#### 5.2.4.1: Methode A - Sättigungscharakteristik

Um die Sättigungscharakteristik des Singulett-P Zustands zu studieren, wurde die Photonenflussdichte  $\Psi_1$  des Farbstofflasers mit dem Oszillator-Pumpstrahlabschwächer zwischen 0 und  $2,6 \cdot 10^{13} \frac{\text{Photonen}}{\text{Puls} \cdot \text{cm}^2}$  variiert. Die Wellenzahl des ersten Schritts wurde auf den Mittelpunkt der Resonanz auf  $\bar{\nu}_1 = 29961,46 \text{ cm}^{-1}$  eingestellt. Für diese Wellenzahl hat jedes Photon eine Energie von  $E_{\bar{\nu}_1} = 5,95 \cdot 10^{-19} \text{ J}$ , somit entspricht eine gemessene Laserpulsintensität von  $I_{\bar{\nu}_1} = 1 \mu\text{J}$  einer Photonenflussdichte  $\Psi_1 = 5,35 \cdot 10^{11} \frac{\text{Photonen}}{\text{cm}^2 \cdot \text{Puls}}$  bei einer Strahlfläche von  $A_{\Psi_1} = 3,1415 \text{ cm}^2$ . Eine genaue Umrechnung von Laserpulsintensität  $I_{\bar{\nu}_1}$  in die Photonenflussdichte  $\Psi_1$  findet sich in Anhang B. Während der Messungen wurde die Photonenflussdichte des zweiten nichtresonanten Anregungsschritts  $\Psi_2$  bei Werten im Bereich von  $8 \cdot 10^{15} \frac{\text{Photonen}}{\text{Puls} \cdot \text{cm}^2}$  konstant gehalten. Um Abweichungen und Fehler der Resultate, bedingt durch Oszillationen der Photonenflussdichte  $\Psi_1$  und Schwankungen in der Zählrate  $\Delta N$ , klein zu halten, wurden jeweils 3 Messungen pro Photonenflussdichte  $\Psi_1$  hintereinander mit einer jeweiligen Wartezeit zwischen den Messungen von 300 Sekunden durchgeführt. Die Menge an  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfällen wurde für jeden Schritt aufsummiert und auf die maximale Anzahl an registrierten  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfällen normiert. Die Fehlerbetrachtung wurde wie in Kapitel 4.3.5 und [53] erwähnt durchgeführt. Der optische Wirkungsquerschnitt

Tabelle 5.3: Parameter aus den Messungen der Sättigungskurven für den ersten Anregungsschritt mit zwei Modellannahmen. Angegeben werden die Wellenlänge  $\lambda_1$  des ersten Anregungsschritts, die Bandbreite des Lasers  $\delta \bar{\nu}_1$  und der optische Wirkungsquerschnitt  $\sigma_\omega$  mit ihren jeweiligen absoluten Fehlern.

Modell	$\bar{\nu}_1 [\text{cm}^{-1}]$	$\delta \bar{\nu}_1 [\text{GHz}]$	$\sigma_\omega [\text{cm}^2]$
Modell [94]	$29961,46 \pm 0,04$	$5,5 \pm 0,5$	$5,13 \pm 0,74 \cdot 10^{-13}$
Modell [87]			$3,92 \pm 0,49 \cdot 10^{-13}$

$\sigma_\Omega$  wurde im Folgenden aus Abbildung 5.7 durch eine  $\chi^2$ -Minimierung der Modellannahmen aus den Gleichungen 2.34 und 2.37 aus Abschnitt 2.3.2 bestimmt und in Tabelle 5.3

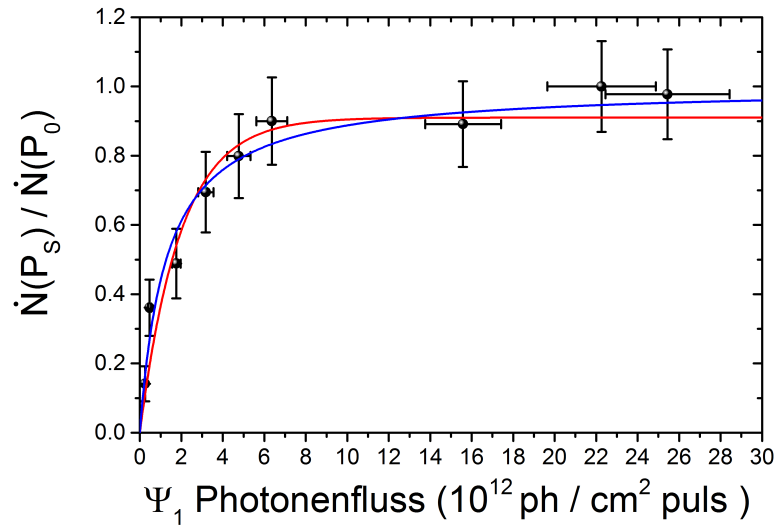


Abbildung 5.7: Sättigungsverhalten des ersten Anregungsschrittes. Neben den Messpunkten sind die Datenpassungen der beiden verwendeten Modelle als Linien (rot = Modell nach Gleichung 2.37, blau = Modell nach Gleichung 2.34) eingezeichnet. Der Photonenfluss des ersten Anregungsschrittes wurde zwischen 0 und  $2,6 \cdot 10^{13} \frac{\text{Photonen}}{\text{Puls} \cdot \text{cm}^2}$ , gemessen an der Puffergaszelle, variiert, während der zweite Anregungsschritt mit  $8 \cdot 10^{15} \frac{\text{Photonen}}{\text{Puls} \cdot \text{cm}^2}$  konstant gehalten wurde. Die Filamenttemperatur lag bei 1050 °C und der Gasdruck innerhalb der Messapparatur wurde auf 95 mbar fixiert. Die Anregungswellenzahlen wurden auf  $\bar{\nu}_1 = 29961,46 \text{ cm}^{-1}$  und  $\bar{\nu}_2 = 28490 \text{ cm}^{-1}$  festgesetzt.

neben der Zentralwellenlänge und der korrespondierenden Laserlinienbreite eingetragen. Mit der Bestimmung des optischen Wirkungsquerschnitts  $\sigma_1$  kann mit Gleichung 2.38 eine modellabhängige untere Grenze für den Einstein-Koeffizient  $A_{ki}$  mit der Annahme eines Zwei-Niveau-Systems (vgl. Abbildung 2.7) berechnet werden zu

$$A_{ki-\text{exp}} \geq 6,3 \cdot 10^7 / \text{s}$$

$$A_{ki-\text{opt}} \geq 4,9 \cdot 10^7 / \text{s}.$$

Dazu korrespondierend kann eine modellabhängige obere Grenze der Lebensdauer des Singulett-P Zustands zu  $\tau_{\text{exp}} \leq 15, \text{ ns}$  bzw.  $\tau_{\text{opt}} \leq 20,3 \text{ ns}$  angegeben werden.



### 5.2.4.2: Methode B - Lebensdauer durch zeitliche Verzögerung

Im nächsten Schritt wurde die Lebensdauer des Singulett-P Zustands durch das schrittweise Verzögern  $\Delta t_{\bar{\nu}_2}$  des zweiten Anregungsschritts  $t(\bar{\nu}_2)$  relativ zum ersten Anregungsschritt  $t(\bar{\nu}_1)$  gemessen. Für jede Verzögerungszeit wurde innerhalb einer Messzeit von  $t_{\text{mess}} = 300$  s die Menge an  $^{254}\text{No}$   $\alpha$  - Zerfällen registriert. Nach einer anschliessenden Wartezeit von 300 s wurde der nächste Messpunkt mit einer anderen Verzögerungszeit  $\Delta t_{\bar{\nu}_2}$  angefahren. Abschliessend wurde auch hier auf die maximal gemessene Anzahl an  $^{254}\text{No}$   $\alpha$  - Zerfällen normiert. Insgesamt wurden zum Studium der Lebensdauer des Singulett-P Zustands 144 Datenpunkte mit verschiedener Verzögerungszeit aufgenommen. Die Laserpulsintensität des ersten Anregungsschritts wurden zu  $I_{\nu_1} = 20 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  und für den nichtresonanten Anregungsschritt zu  $I_{\nu_2} = 4 \text{ mJ} / \text{cm}^2$  bestimmt. Zur Auswertung der Messdaten aus Ab-

Tabelle 5.4: Zusammenfassung der Parameter aus den Messungen der Verzögerungsmessungen mit zwei Modellannahmen. Aufgetragen sind die Lebensdauern  $\tau_1$  und  $\tau_2$  mit der jeweiligen Modellannahme eines bzw zweier exponentieller Zerfälle.

Modell	$\tau_1[\text{ns}]$	$\tau_2 [\text{ns}]$	red. $\chi^2$
ein $\tau$	$86,4 \pm 7,8$	–	1,54
zwei $\tau$ mit Modell ([94]) Gleichung 2.37	15,9	$105,8 \pm 15,8$	1,51
zwei $\tau$ mit Modell ([87]) Gleichung 2.34	20,3	$106,9 \pm 17,7$	1,51

bildung 5.8 wurden zwei Ansätze verfolgt. Zum einen wurde die Zerfallscharakteristik mit einem exponentiellen Zerfall mit der Lebensdauer  $\tau_1$  beschrieben. In diesem Fall wurde  $\tau_1$  als freier Parameter behandelt.

Zum anderen wurden zwei exponentielle Funktionen mit zwei Lebensdauern  $\tau_1$  und  $\tau_2$  an die Daten angepasst, wobei für  $\tau_1$  die Ergebnisse der Sättigungsmessung jeweils auf 15,9 ns und 20,3 ns fixiert wurde. Für beide exponentiellen Ansätze wurde dabei auf die  $\chi^2$  - Reduzierung zur Minimierung der Abweichung der Datenanpassungen an die Messwerte zurückgegriffen. Berücksichtigt wurde das Plateau, das sich aus der Überlagerung der beiden Laser mit einer Breite von 18 ns und einem Jitter von 10 ns ergibt. Dementsprechend wurden nur Verzögerungszeiten  $\geq 13$  ns bei der Datenanpassung berücksichtigt. Die Ergebnisse der Datenanpassungen finden sich neben dem jeweiligen kleinsten erreichten Wert für red.  $\chi^2$  in Tabelle 5.4. Beide exponentiellen Datenanpassungen zeigen mit einer  $\chi^2$ - Reduzierung eine gute Übereinstimmung mit den Datenpunkten der Messungen.

### 5.2.4.3: Diskussion der Ergebnisse

Aus den Verzögerungsmessungen ist die Lebensdauer  $\tau_{\text{ki}}$  des Singulett-P Zustands, welche aus den Sättigungsmessungen zuvor bestimmt wurde (vgl. Gleichung 5.2.4), mit der Annah-

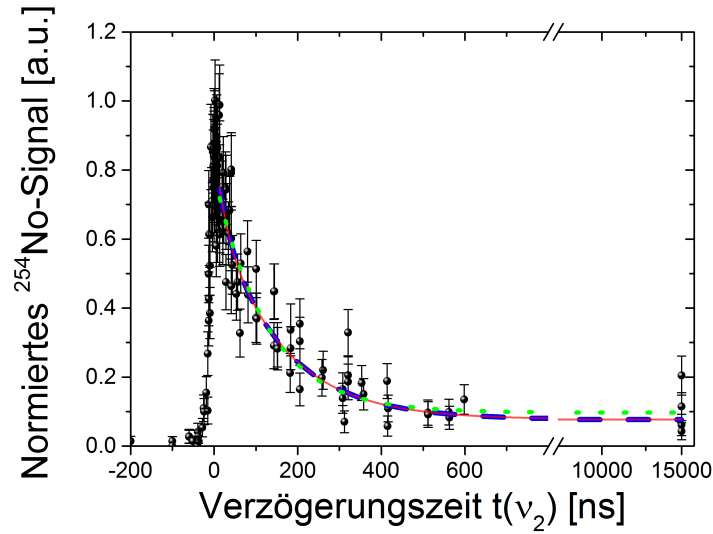


Abbildung 5.8: Aufgetragen ist die normierte Anzahl an  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfällen pro Verzögerungsschritt. Als Datenanpassungen wurden zwei Modelle mit einem exponentiellen Zerfall und mit zwei exponentiellen Zerfällen mit unterschiedlichen Halbwertszeiten angepasst. Die Anpassung eines exponentiellen Zerfalls mit der Lebensdauer  $\tau_1$  als freier Parameter wird mit der grün gepunkteten Kurve dargestellt. Bei der Anpassung von zwei exponentiellen Zerfällen wurde die Lebensdauer der Zerfallsfunktion mit  $\tau_1 = 20,3$  ns (durchgezogene rote Linie) und auf  $\tau_1 = 15,9$  ns (blau gestrichelt) fixiert, den Resultaten der Sättigungsmessung entsprechend. Die Laserpulsintensitäten lagen während den Messungen bei  $I_{\bar{\nu}_1} = 20 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  für den ersten Anregungsschritt und  $I_{\bar{\nu}_2} = 4 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  für den nichtresonanten Schritt. Die Filamenttemperatur lag bei  $1050^\circ\text{C}$  und der Gasdruck innerhalb der Puffergaszelle wurde auf 95 mbar fixiert. Die Anregungswellenzahlen wurden zu  $\bar{\nu}_1 = 29961,46 \text{ cm}^{-1}$  und  $\bar{\nu}_2 = 28490 \text{ cm}^{-1}$  bestimmt.

me eines einfachen exponentiellen Zerfalls nicht reproduzierbar. Mit diesem Modell ergibt sich die Lebensdauer des Zustands zu  $86,41 \pm 7,77$  ns. Diese ist um einen Faktor

$$\Delta t = 5,4 \text{ bzw. } 4,3 \quad (5.9)$$

verschieden zu den Lebensdauerwerten, die man aus den Sättigungsmessungen erhält. Diese Unvereinbarkeit zwischen den beiden Ergebnissen führt zu der Annahme, dass sich innerhalb thermischer Energien im Bereich des Singulett-P Zustands ein optisch nicht-anregbarer weiterer atomarer Übergang befindet. Wenn dieser ausreichend nahe gelegen ist, kann Relaxation durch Gasstöße (im Folgenden als Stoßrelaxation bezeichnet) einen signifikanten Beitrag neben der spontanen Emission zur Entvölkerung des Singulett-P Zustands liefern.

Die Wahrscheinlichkeit für einen stoßinduzierten Umpumpmechanismus  $G_{\text{Quench}}$  ist mit der Gleichung [93]

$$G_{\text{Quench}} = N_B \cdot \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi \cdot \mu}} \cdot \langle \sigma_{km} \rangle \quad (5.10)$$

gegeben. Hierbei ist  $N_B$  die Dichte der Gasatome,  $k_B$  die Boltzmann-Konstante,  $T$  die Temperatur des Gases und  $\mu$  die reduzierte Masse und  $\sigma_{km}$  der Wirkungsquerschnitt der Stoßrelaxation. Der Wirkungsquerschnitt für die Stoßrelaxation in tiefergelegene Zustände ist abhängig vom Abstand der atomaren Zustände und von der Temperatur des Stoßpartners. Besonders groß wird der Wirkungsquerschnitt dieses stoßinduzierten Energietransfers, wenn der Abstand der beiden atomaren Zustände innerhalb thermischer Energien  $k_B \cdot T$  liegt [93]. Die thermisch verfügbare Energie, die während Stößen übertragen werden kann, lässt sich zu  $E = 3/2 k_B T$  abschätzen. Nimmt man eine Temperatur des Gases unmittelbar während dem Heizen des Filamentdrahts zu  $T_{\text{Gas}} = 400 \text{ K}$  an, so ergibt sich eine thermische Energie von  $E_{th} \approx 417 \text{ cm}^{-1}$ . Mit dem bekannten Gasdruck, der Temperatur des Gases und der reduzierten Masse von Nobelium und Argon lässt sich die Zeit zwischen zwei Stößen zu  $t_{\text{Stoss}} \leq 1,61 \text{ ns}$  abschätzen.

Laut den theoretischen Vorhersagen gibt es neben dem optisch anregbaren Singulett-P

Tabelle 5.5: Theoretische Vorhersagen der drei Triplett-D-Zustände und des Triplett  $^3P_2$ -Zustands in Nachbarschaft des Singulett-P-Zustands. Als Fehler wird für die Triplett-Zustände eine Unsicherheit der theoretischen Vorhersagen von  $\pm 300 \text{ cm}^{-1}$  angenommen. Zu den theoretischen Vorhersagen wird der experimentell bestimmte Wert des Singulett-P Zustands gezeigt.

Termbez. der Linie	Wellenz. [5] [ $\text{cm}^{-1}$ ]	Wellenz. [8] [ $\text{cm}^{-1}$ ]	Diese Arbeit [ $\text{cm}^{-1}$ ]
[Rn]5f <sup>14</sup> 6d7s $^3D_1$	28338	28436	–
[Rn]5f <sup>14</sup> 6d7s $^3D_2$	28778	28942	–
[Rn]5f <sup>14</sup> 6d7s $^3D_3$	29897	30183	–
[Rn]5f <sup>14</sup> 7s7p $^1P_1$	30056	30203	29961,46
[Rn]5f <sup>14</sup> 7s7p $^3P_2$	25374	26625	–

Zustand [Rn]5f<sup>14</sup> 7s7p  $^1P_1$  in der Nähe weitere, nicht vom Grundzustand aus optisch anregbare Zustände mit der gleichen Parität wie der Grundzustand. Hierbei handelt es sich um ein Feinstruktur Triplett mit der Konfiguration 5f<sup>14</sup> 6d7s D. Die theoretischen Werte sind zusammen mit dem Wert für den  $^1P_1$ -Zustand in Tabelle 5.5 zusammengefasst. Vergleicht man die energetische Lage des [Rn]5f<sup>14</sup> 7s7p  $^1P_1$ -Zustands bei  $\bar{\nu}_1 = 29961,46 \text{ cm}^{-1}$  mit den Werten aus Tabelle 5.5 innerhalb des jeweiligen Fehlers der theoretischen Angaben von  $\pm 300 - 800 \text{ cm}^{-1}$  und unter Berücksichtigung von Stößen mit thermischen Energieüberträgen der Gasatome auf die angeregten Nobeliumatome, so ist die Annahme des Verlustkanals [Rn]5f<sup>14</sup> 7s7p  $^1P_1 \rightarrow$  [Rn]5f<sup>14</sup> 6d7s  $^3D_3$  plausibel.

An die Datenpunkte aus Abbildung 5.8 lassen sich sowohl ein Modell mit einem exponentiellen Zerfall, als auch ein Modell mit zwei exponentiellen Zerfällen anpassen. Dabei wird eine etwas bessere Beschreibung der Datenpunkte aus Abbildung 5.8 mit der Annahme von zwei exponentiellen Zerfällen erreicht. Dies zeigt, dass das Signal des schnellen Zerfalls des Singulett-P Zustands von den Umpumpprozessen, im Folgenden mit  $G_{Quench}$  bezeichnet, in den tieferliegenden Triplett  $^3D_3$ -Zustand und der korrespondierenden Lebensdauer des Triplett  $^3D_3$ - Zustands überlagert wird. Zum besseren Verständnis dieses Sachverhaltes wurden daher Lebensdaueremessungen des Singulett-P Zustands in Ytterbium durchgeführt (vgl. Kapitel 4.3.5). Auch hier spielt die Stoßrelaxation eine nicht zu vernachlässigende Rolle, allerdings konnte bei Ytterbium in der Zerfallscharakteristik der Beitrag des Singulett-P Zustands eindeutig identifiziert werden und die Lebensdauer, die in der Literatur für Ytterbium angegeben wird, aus der Datenanpassung mit einem dreifachen exponentiellen Zerfall in etwa reproduziert werden. Ein möglicher Grund dafür ist, dass in Ytterbium der Abstand zu den Triplett D-Zuständen grösser ist als in Nobelium und daher der Wirkungsquerschnitt für Umpumpprozesse aufgrund eines grösseren Energieabstands kleiner wird (vgl. Kapitel 4.3.5 und Abbildung 4.12). Das hat im Umkehrschluss zur Folge, dass  $G_{Quench}$  bei gleichen Randbedingungen wie Gastemperatur und Puffergasdruck möglicherweise kleiner ist als in Nobelium.

Elektronen, die in den tieferliegenden Triplett  $^3D_{1,2,3}$  Zuständen zu finden wären, können durch die Verwendung eines nichtresonanten zweiten Schritts bei 351 nm ebenfalls ionisiert werden. Interpretiert man in Abbildung 5.8 die Ereignisse im Bereich von  $t \geq 1000$  ns als Zerfälle aus einem langlebigen Zustand, so kann es sich dabei um nichtresonante Ionisation entweder aus dem tiefliegenden Zustand  $^3P_2$  oder aber aus einem bisher vollkommen unbekannten Mischzustand handeln. Neben dem Singulett-P Zustand könnten also weitere atomare Übergänge zur Signalamplitude beitragen, so dass die Beschreibung des Sättigungsverhalten des Singulett-P Zustands aus Abschnitt 5.2.4 mit Hilfe eines Zwei-Niveau-Systems nur näherungsweise möglich ist und die Bestimmung des Einstein-Koeffizient  $A_{ki}$  mit den Gleichungen 2.34 und 2.37 nur als unterer Grenzwert angesehen werden kann. Zur exakten Beschreibung der Übergangsraten muss ein komplexeres Modell herangezogen werden.

Wie in Abbildung 5.9 gezeigt, muss dieses Modell die Entvölkerung der Zustände in das Kontinuum (bezeichnet mit  $I_x$ ), Stoßrelaxation im Gas und die spontane Emission der einzelnen Zustände berücksichtigen. Daraus ergibt sich die Anwendung eines Niveau-Systems mit mehreren beteiligten Zuständen.

Hierbei symbolisieren die schwarzen Pfeile Abbildung 5.9 die Relaxation aus einem höherangeregten Zustand in den tieferliegenden Zustand,  $I_x$  (violette Pfeile) die Ionisationsraten aus den jeweiligen Zuständen in das Kontinuum und der rote Pfeil (im Folgenden mit  $G_{Quench}$  bezeichnet) die Übergangssrate des Singulett-P Zustand in den  $^3D_3$ -Zustand aufgrund von Stoßrelaxation. Die Anzahl der Zustände ist dabei allgemein erstmal nur von der Bedingung, dass die Energie mit dem zweiten nichtresonanten Anregungsschritt bei 351 nm zur Ionisation ausreichend ist, abhängig. Die Schwierigkeit der Verwendung eines multiplen Niveau-Systems liegt in den Parametern, die nicht oder nur unvollständig bekannt sind. Hierbei handelt es sich um die Wirkungsquerschnitte aus den Ionisationsraten in das

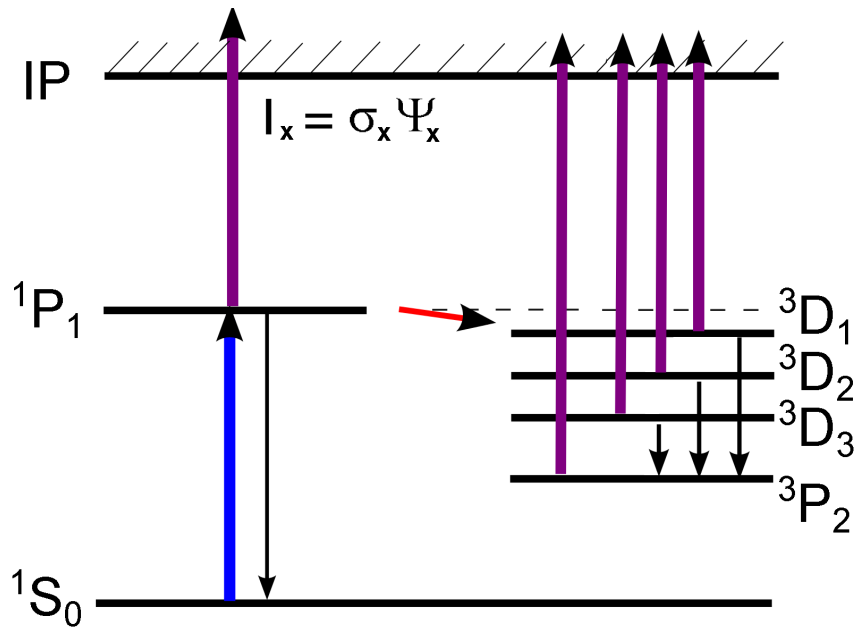


Abbildung 5.9: Schematisches Niveau-Systems mit mehreren Zuständen. Neben dem optisch angeregten atomaren Übergang werden zusätzlich das Ionisationspotential, alle tieferliegenden Triplet-D Zustände und der Triplet- $^3P_2$  Zustand modelliert. Die Levelbezeichnung und deren energetische Lage erfolgte mit Hilfe von [5]. Die Werte für die einzelnen Zustände werden in Tabelle 5.5 aufgelistet. Die schwarzen Pfeile markieren dabei den spontanen Zerfall in einen tieferliegenden Zustand, während der rote Pfeil das Vorhandensein von Stoßrelaxation andeutet. Der blaue Pfeil markiert die stimulierte Anregung in den Singulett-P Zustand und die violetten Pfeile symbolisieren die Ionisation ins Kontinuum. Weitere Informationen finden sich im Text.

Kontinuum  $I_x$ , die Relaxation der Triplet- $^3D_{1,2,3}$  Zustände in den Triplet- $^3P_2$  Zustand und die Übergangsrate  $G_{Quench}$ . Zur Vereinfachung dieses Sachverhalts ist es möglich, einige Annahmen bezüglich der Parameter zu machen. Da die Ionisationsraten allesamt eine nicht-resonante Photoionisation beschreiben, können Wirkungsquerschnitte mit in der Literatur üblichen Angaben von  $\sigma_{nonres} \approx 10^{-17} \text{cm}^2$  verwendet werden. Mit einer durchschnittlichen Zeit zwischen den Stößen von 1,61 ns und der Annahme, dass jeder Stoß zu einer Stoßrelaxation des angeregten Valenzelektrons führt, würde dies einer Übergangsrate von  $G_{Quench} = 6,2 \cdot 10^8 / \text{s}$  entsprechen.

Eine genauere Bestimmung der Einstein-Koeffizienten  $A_{ki}$  für den Übergang  $[\text{Rn}]5f^{14} 7s7p \ ^1P_1 \rightarrow [\text{Rn}]5f^{14} 7s^2 \ ^1S_0$  wird in der Doktorarbeit von [103] durch die Verwendung eines Niveau-Systems mit mehreren beteiligten Zuständen erfolgen.

### 5.2.5 Das Sättigungsverhalten des zweiten Anregungsschrittes

Im nächsten Schritt wurde das Sättigungsverhalten des zweiten Schritts studiert. Hierfür wurde die Photonenflussdichte  $\Psi_2$  im Bereich von  $\Psi_2 = 0 - 9 \cdot 10^{15} \frac{\text{Photonen}}{\text{cm}^2 \cdot \text{Puls}}$  variiert und für jeden Wert von  $\Psi_2$  in drei Messungen die Menge an  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfällen mit einer nachfolgenden Wartezeit von 5 Halbwertszeiten bestimmt. Anschließend wurde auf die maximale Anzahl an  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfällen normiert. Die Photonenflussdichte des ersten Anregungsschritts wurde während den Messungen bei  $\Psi_1 = 4,05 \cdot 10^{13} \frac{\text{Photonen}}{\text{cm}^2 \cdot \text{Puls}}$  konstant gehalten (vgl. Kapitel 5.2.4). Die Wellenzahl des ersten Anregungslasers war gegeben mit  $\bar{\nu}_1 = 29961,46 \text{ cm}^{-1}$ . Insbesondere im Falle des nichtresonanten Ionisationsschrittes lässt sich ein einfaches Zwei-Niveau System zur Abschätzung des Wirkungsquerschnitts der Ionisation  $\sigma_2$  anführen. Diese ist gegeben aus Abschnitt 2.18:

$$\dot{N}(\Psi_2) = \dot{N}_0 \cdot (1 - e^{-\sigma_2 \cdot \Psi_2}) \quad (5.11)$$

Hierbei ist  $\Psi_2$  die Photonenflussdichte des Ionisationslasers am Ort des Filaments und  $\sigma$  der Wirkungsquerschnitt der Ionisation. Analog zur Modellanwendung für den ersten Schritt wurde die normierten Nobeliumraten gegenüber der eingestrahnten Photonenflussdichte aufgetragen. Freie Parameter der Datenanpassung war  $\sigma_2$ . Aus der Datenanpassung konnte der Wirkungsquerschnitt für den Ionisationsschritt mit

$$\sigma = (4,7 \pm 0,7) \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$$

bestimmt werden. Damit liegt der Wert im typischen Bereich, den man für die nicht-resonante Photoionisation erwarten würde (vgl. auch Kapitel 2.3.1).

### 5.2.6 Suche nach Rydberg-Zuständen in der Nähe des Ionisationspotentials

Nach der Charakterisierung des angeregten Zustands wurde die Suche nach Rydbergzuständen in  $^{254}\text{No}$  begonnen. Rydberg-Zustände sind hochangeregte Zustände der Valenzelektronen nahe des Ionisationspotentials. Durch das Auffinden dieser Elektronenzustände ist es möglich, durch die Konvergenz einer Rydbergserie das Ionisationspotential mit einer Genauigkeit im Bereich von wenigen  $\text{cm}^{-1}$  zu bestimmen. Eine grobe Klassifizierung der gefundenen Serie lässt sich über die Bestimmung des Quantendefekts realisieren. Für die Suche nach Rydbergzuständen wurde ein zweifach-resonantes Anregungsschema mit zwei Farbstofflasern verwendet, dargestellt in Abbildung 5.11(a). Hierbei wurde mit einer Schrittweite von 0,5 und 1  $\text{cm}^{-1}$  bei einer durchschnittlichen Pulsintensität von  $I_{\bar{\nu}_2} = 250 \frac{\mu\text{J}}{\text{cm}^2}$  gescannt. Als Farbstoffe wurden unter anderem Coumarin 120 und Stilben 3 verwendet, welche in dem Bereich der erwarteten Anregungswellenlängen von 420-440 nm eine Konversionseffizienz von bis zu 15% aufweisen [109]. Um die Pulsintensität des zweiten Schritts an der Messapparatur zu erhöhen, wurde dem Aufbau ein zusätzlicher hochreflektierender Spiegel hinzugefügt, mit dessen Nutzung das Farbstofflaserlicht zurückreflektiert wurde. Ansonsten waren die Parameter wie in Abschnitt 5.2.3 beschrieben. Einer der gefundenen Rydberg-Zustände wurde mit höherer Statistik und einer Schrittweite von 0,2  $\text{cm}^{-1}$  aufge-

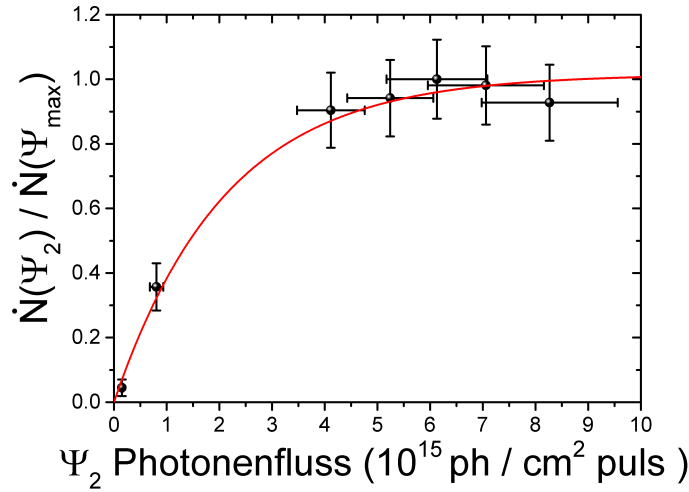


Abbildung 5.10: Aufgetragen ist die normierte Anzahl der detektierten Nobelium-254  $\alpha$ -Zerfälle gegenüber der Photonenflussdichte  $\Psi_2$ . Bei der durchgezogenen Linie handelt es sich um eine Datenanpassung basierend auf dem in Gl. 5.11 angegebenen Sättigungsverhalten. Die Laserpulsintensität des ersten Anregungsschritts lag bei  $I_{\bar{\nu}_1} = 15,91 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ . Der Puffergasdruck lag bei 95 mbar und die Filamenttemperatur wurde zu  $1050^\circ\text{C}$  gemessen. Die Anregungswellenzahlen während der Messung wurden konstant auf  $\bar{\nu}_1 = 29961,46 \text{ cm}^{-1}$  und  $\bar{\nu}_2 = 28490 \text{ cm}^{-1}$  gehalten.

nommen und ist in Abbildung 5.11(b) zusammen mit einer Anpassung eines Voigtprofils dargestellt. Die Anpassung ergab eine Anregungswellenlänge des zweiten resonanten Schritts von  $\bar{\nu}_2 = 23528,33 \text{ cm}^{-1}$  und einer Halbwertsbreite von  $\text{FWHM} = (0,5 \pm 0,1) \text{ cm}^{-1} \equiv (15,0 \pm 3,0) \text{ GHz}$ .

Insgesamt wurden im Zentrum der Resonanz 39 Nobelium-254 Alphazerfälle ( $N_{\text{Rydberg}}$ ) innerhalb von  $t_{\text{mess}} = 300 \text{ s}$  registriert. Dies entspricht einer Zählrate von

$$R_{\text{Rydberg}}^{\alpha} = \frac{N_{\text{Rydberg}}}{t_{\text{mess}}} = (0,13 \pm 0,02) / \text{s} \quad (5.12)$$

Die erreichte Effizienz  $\epsilon_{\text{MP}}$  in zweifach-resonanter Anregung ist dann gleich dem Quotienten aus der gemessenen  $\alpha$ -Zählrate am PIPS-Detektor  $R_{\text{Rydberg}}$  zu der einkommenden Rate auf dem SHIP-Detektor zu  $R_{\text{SHIP}}^{\text{Ion}}$  mit  $\epsilon_{\text{MP}} = (2,1 \pm 0,4)\%$ . Hierbei handelt es sich um die erreichte Effizienz der Puffergaszelle bei der Vermessung dieses Rydbergzustands in zweifach resonanter Anregung. Auf Basis des gefundenen Rydbergzustands kann im nächsten Schritt eine grobe Abschätzung des Ionisationspotentials durch Angabe einer Obergrenze gegeben werden

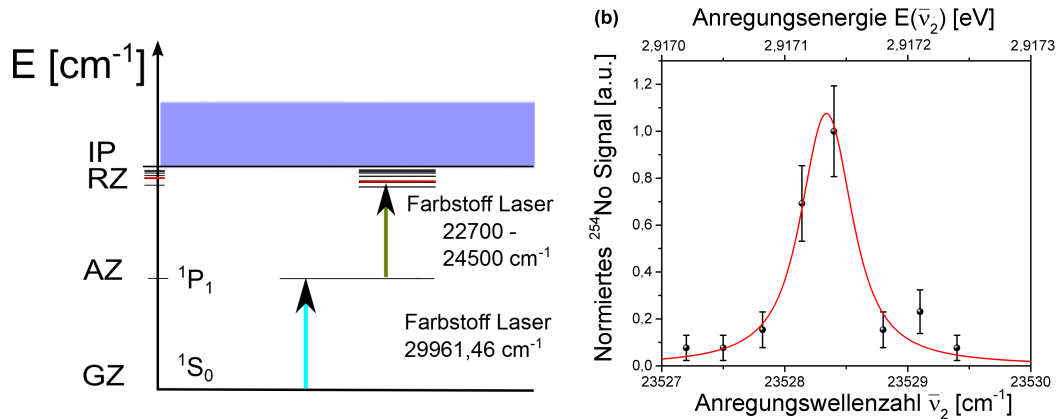


Abbildung 5.11: Anregungsschema Rydbergzustände (a) und ein Rydbergzustand (b). Das für die Suche nach den Rydbergzuständen verwendete Anregungsschema in einem Energiebereich von  $\bar{\nu}_2 = 22700 - 24500 \text{ cm}^{-1}$  für den zweiten Anregungsschritt. Gefunden wurde ein Rydberg-Zustand in Nobelium bei einer Anregungswellenzahl von  $\bar{\nu}_2 = 23528,33 \text{ cm}^{-1}$ . Gemessen wurde jeweils 300 s pro Messpunkt bei einer Laserpulsintensität von  $I_{\bar{\nu}_1} = 15,91 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  für den ersten Anregungsschritt und  $I_{\bar{\nu}_2} = 250 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  für den zweiten Anregungsschritt. Bei der durchgezogenen Linie handelt es sich um eine Datenanpassung mit Hilfe eines Voigtprofils. Die Datenpunkte wurden auf die maximal erreichte Anzahl registrierter  $^{254}\text{No}$ -Zerfälle pro Wellenzahl normiert.

### 5.2.7 Abschätzung des ersten Ionisationspotentials

Zur Abschätzung des ersten Ionisationspotentials werden zwei Anregungsschemata, die nichtresonante Ionisation 5.2.3 und die zweifach resonante Anregung mittels des Rydbergzustands aus Kapitel 5.2.6 herangezogen

#### Ionisationspotential durch nichtresonante Ionisation

Eine grobe Abschätzung des ersten Ionisationspotentials  $E_{\text{IP}}$  in Nobelium lässt sich mit der einfachen Beziehung  $\bar{\nu}_1 + \bar{\nu}_2 \geq E_{\text{IP}}$  (vgl. Gleichung 2.3.1) mit  $\bar{\nu}_1$  der erste gemessene Anregungsschritt und  $\bar{\nu}_2$  der zweite Anregungsschritt. Mit den aus den Messungen bekannten Werten für  $\bar{\nu}_1 = 29961,46 \text{ cm}^{-1}$  und  $\bar{\nu}_2 = 28490 \text{ cm}^{-1}$  berechnet sich die Obergrenze des



Ionisationspotentials von Nobelium zu

$$E_{\text{IP}} \leq (29961,48 + 28490) \text{ cm}^{-1} = 58451,48 \text{ cm}^{-1} \equiv 7,247 \text{ eV} \quad (5.13)$$

#### Ionisationspotential durch resonante Anregung

Analog zu der Abschätzung in Abschnitt 5.2.7 lässt sich mit der gleichen Beziehung eine obere Grenze des Ionisationspotentials durch Nutzung der Anregungswellenzahl des gefundenen Rydbergzustands anstelle des zweiten nichtresonanten Schritts mit Gleichung 2.3.1 geben. Hierbei muss allerdings beachtet werden, dass die Anregungsenergie alleine zur Ionisation nicht ausreicht. Die dafür notwendige Restenergie kann aus Interaktionen der Elektronen mit den Puffergasatomen aufgebracht werden. Die thermisch verfügbare Energie bei einer Gastemperatur von  $T_{\text{Gas}} = 400 \text{ K}$  vor dem Filamentdraht beträgt  $E_{\text{th}} \approx 417 \text{ cm}^{-1}$ . Dieser Energieübertrag muss daher in der Abschätzung ebenfalls berücksichtigt werden. Die Obergrenze für das Ionisationspotential kann dann mit  $\bar{\nu}_1 = 29961,48 \text{ cm}^{-1}$  und  $E_{\text{th}} \approx 417 \text{ cm}^{-1}$  berechnet werden zu

$$E_{\text{IP}} \leq (29961,46 + 23528,33 + 417) \text{ cm}^{-1} = 53906,79 \text{ cm}^{-1} \equiv 6,6835 \text{ eV}. \quad (5.14)$$

Aus den Messungen der Lebensdauer des Singulett-P Zustands hat sich ergeben, dass durch Stoßrelaxation der tieferliegende Triplett-D Zustand bevölkert werden kann und der gemessene Rydbergzustand von dem Triplett-D Zustand aus angeregt worden sein könnte. Dies hat allerdings keinen Einfluss auf die Abschätzung der oberen Grenze des Ionisationspotentials, sondern wirkt sich lediglich auf die Unsicherheit in dem unteren Limit des Ionisationspotentials aus.

#### Diskussion der Abschätzung der oberen Grenze des Ionisationspotentials

Als Vergleich dienen neben den theoretischen Vorhersagen aus [5,7,8] und der semi-empirisch extrapolierte Wert aus [183], zusammengefasst in Tabelle 5.6. In der semi-empirischen Bestimmung wird über die Messung der Energieintervalle  $\Delta E$  der Rydbergzustände die effektive Quantenzahl bestimmt und über die Rydberg-Ritz-Formel das Ionisationspotential mit einer Unsicherheit angegeben werden. Basierend auf den in [183] beschriebenen Vergleichen zu bekannten Rydbergserien kann mit der Annahme, dass sich die Ionisationsenergie der Lanthaniden und Aktiniden in einem nicht-linearen Zusammenhang beschreiben lassen, über den Verlauf dieser Anpassung eine Abschätzung des Ionisationspotentials der bis dahin nicht spektroskopisch untersuchten Aktinide angeben.

Ein Vergleich der theoretischen Vorhersagen des ersten Ionisationspotentials in Nobelium mit der oberen Grenze, die mit Hilfe des Rydbergzustands in Gleichung 5.14 ermittelt wurde, zeigt, dass innerhalb der Unsicherheit eine gute Übereinstimmung mit der ermittelten oberen Grenze besteht. Da es noch keine experimentellen Daten zu dem Ionisationspotential in Mendelevium gibt, ist Nobelium das Element in der Reihe der Aktiniden mit dem

Tabelle 5.6: Zusammenfassung aller verfügbaren theoretischen und experimentellen Angaben zum Ionisationspotential für No. Angegeben wird in der Referenz der Wert des Ionisationspotentials in  $\text{cm}^{-1}$  und eV, das Jahr und die zugrundeliegende Methode bzw. Modell. Bei denen in dieser Arbeit angegebenen Werte handelt es sich lediglich um abgeschätzte Obergrenzen für das Ionisationspotential in Nobelium. Details sind im Text beschrieben.

Referenz	$E_{IP}$ [ $\text{cm}^{-1}$   eV]	Jahr	Methode
Diese Arbeit I	$\leq 58451,48$   7,2471	2016	Photoionisation
Diese Arbeit II	$\leq 53906,79$   6,6835	2016	Rydberganregung
Ref. [5]	53489(600)   6,632(74)	2007	IHFSCC
Ref. [7]	53701(600)   6,658(74)	2007	MCDF
Ref. [8]	54390(600)   6,743(74)	2014	RCC
Ref. [183]	53600(600)   6,645(74)	1974	Extrapolation

höchsten experimentell bestimmten Ionisationspotential. Als Termbezeichnung besitzt das einfach ionisierte Nobelium die Konfiguration  $[\text{Rn}]5f^{14} 7s^2 S_{1/2}$ . Neben dem in Kapitel 5.2.6 gezeigten und hier verwendeten Rydbergzustand konnten weitere Rydbergzustände in einem Wellenzahlenbereich von  $\bar{\nu}_1 + \nu_2 = 53142,5 - 53668,5 \text{ cm}^{-1}$  identifiziert werden. An dieser Stelle wurde lediglich einer dieser Zustände gezeigt, da die Analyse dieser Messdaten zum Zeitpunkt der Anfertigung dieser Arbeit nicht abgeschlossen ist und zudem durch den bereits beschrieben gasinduzierten Umpumpprozess eine eindeutige Aussage zum jetzigen Zeitpunkt nicht möglich ist.

### 5.2.8 Experimentelle Gesamteffizienz der Puffergaszelle

Die experimentelle Gesamteffizienz der RADRIS-Puffergaszelle  $\epsilon_{\text{MP}}$  bestimmt sich aus dem Verhältnis der in Fokalebene von SHIP ankommenden Ionen zu dem im Verlauf der Messungen durch ihren charakteristischen Alphazerfall registrierten Ionen. Zur besseren Vergleichbarkeit werden alle Daten auf einen typischen Partikelstrom von  $1 \mu\text{A}_p$  normiert.

#### PIPS- Detektor der Puffergaszelle

Die Rate an registrierten  $\alpha$ -Zerfällen  $R_{\text{PIPS}}^\alpha$  lässt sich durch die Menge an  $\alpha$ -Zerfällen auf dem PIPS-Detektor  $N_{\alpha\text{PIPS}}$  innerhalb der Messzeit  $t_{\text{mess}}$  bestimmen zu

$$R_{\text{PIPS}}^\alpha = \frac{N_{\text{PIPS}}^\alpha}{t_{\text{mess}}}. \quad (5.15)$$

Zur Bestimmung der durchschnittlich erreichten Effizienz der Puffergaszelle wurden mehrere Messungen mit vergleichbaren Randbedingungen wie Laserpulsenergie, Strahlfleckgröße, Filamenttemperatur, Filamentposition, Strahlstrom, Puffergasdruck und Messzeit herangezogen. Insgesamt wurden in sechs vergleichbaren Messungen 814  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfälle auf

dem PIPS-Detektor registriert. Die gesamte Messzeit betrug  $t_{\text{mess}} = 2100\text{ s}$ . Einsetzen der Werte in Gleichung 5.15 ergibt eine Zählrate von:

$$R_{\text{PIPS-mean-norm.}}^{\alpha} = (0,39 \pm 0,01)/\text{s}. \quad (5.16)$$

Die höchste Zählrate nach einem Reinigungsprozess des Filamentdrahts (vgl. Kapitel 5.2.1) wurde bei einer Messzeit von  $t_{\text{mess}} = 600\text{ s}$  mit insgesamt 450 registrierten  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfällen, was eine Zählrate von

$$R_{\text{PIPS-max-norm.}}^{\alpha} = (0,75 \pm 0,04)/\text{s} \quad (5.17)$$

entspricht. Die Gesamteffizienz der Puffergaszelle bestimmt sich zu

$$\epsilon_{\text{MP}} = \frac{R_{\text{PIPS}}^{\alpha}}{R_{\text{SHIP}}^{\text{Ion}}}. \quad (5.18)$$

Als erwartete Ionenrate wurde ein Wert von  $= 6,14/\text{s}$  bestimmt (Gleichung C.6). Die entsprechenden Effizienzen, die sich aus den bereits diskutierten Zählraten ergeben, sind zusätzlich zur maximalen Gesamteffizienz beim direkten Transport der gestoppten Nobeliumkerne auf den PIPS-Detektor (vgl. Kapitel 5.2.1) in Tabelle 5.7 zusammengefasst. Die Effizienz des direkten Transportes ist dabei eine Obergrenze der maximal erreichbaren Gesamteffizienz der Puffergaszelle im RIS-Modus.

Tabelle 5.7: Inhalt der Tabelle sind die gemessenen Gesamteffizienzen in den verschiedenen Anregungsmodi plus der berechneten Effizienz der Puffergaszelle bei der direkten Identifikation der Nobeliumatome auf den PIPS-Detektor.

Modus	Gesamteffizienz [%]
Zwei-Stufen Photoionisation Mittelwert	$6,4 \pm 1,0$
Zwei-Stufen Photoionisation Maximalwert	$12,2 \pm 1,3$
Rydberganregung Maximalwert	$2,1 \pm 0,4$
Direkte Identifikation Maximalwert	$25,6 \pm 2,3$

Abschliessend wird an dieser Stelle die erreichte Gesamteffizienz der Puffergaszelle ohne Berücksichtigung der Transmission von SHIP diskutiert und mit den früheren Effizienzabschätzungen und der Abschätzung aus Gleichung 4.16 verglichen und eingeordnet. Die erste Effizienzangabe der RADRIS-Methode in der Puffergaszelle wurde 2007 von [35] zu  $\epsilon_{\text{MP-Yb}} = 0,8\%$  angegeben. Mit Hilfe der Effizienz wurde die erwartete Rate für Nobelium zu  $R_{\text{PIPS-theo}}^{\alpha} = 0,14/\text{s}$  bei einer Produktionsrate von  $R_{\text{SHIP-Target}}^{\text{Ion}} = 17/\text{s}$  bestimmt. Tatsächlich wurden aber in 2015 bei einer in Fokalebene gemessenen Rate von SHIP  $R_{\text{SHIP}}^{\text{Ion}} = 6,14/\text{s}$  durchschnittliche Alphazerfallsraten von  $R_{\text{PIPS-alpha-exp}}^{\alpha} = 0,39/\text{s}$  gemessen. Wenn man annimmt, dass eine in Fokalebene gemessene Rate von  $R_{\text{SHIP}}^{\text{Ion}} = 6,14/\text{s}$  einer Produktionsrate von  $R_{\text{SHIP-Target}}^{\text{Ion}} = 17/\text{s}$  entspricht, kann im nächsten Schritt die experimentell bestimmte

Rate an  $^{254}\text{No}$   $\alpha$ -Zerfällen mit dem angegebenen Wert aus [35] verglichen werden. Hierbei ist die experimentell bestimmte Rate um einen Faktor

$$\Delta R^\alpha = \frac{R_{PIPS-exp}^\alpha}{R_{PIPS-theo}^\alpha} = \frac{0,39}{0,14} = 2,78 \quad (5.19)$$

höher als die erwartete, auf den Messungen an  $^{155}\text{Yb}$  basierende Abschätzung aus [52]. In Gleichung 4.16 wird eine Effizienz von 7% für die RIS an  $^{254}\text{No}$  angegeben.

Im Folgenden wird eine Abschätzung der Abdampf- und Ionisationseffizienz  $\epsilon_{\text{EvapRIS}}$  an Nobelium vorgenommen. Hierbei definiert man den direkten Transport des Fusionsproduktes  $\epsilon_{\text{tot-trans.}}$  nach dem Abstoppen auf den PIPS-Detektor innerhalb der Puffergaszelle als der maximal erreichbare Wert der Effizienz, der mit RADRIS Messungen an Nobelium erreicht werden kann. Die Transporteffizienz kann unter Berücksichtigung der Werte aus Tabelle 4.4 zu

$$\epsilon_{\text{tot-trans.}} = \epsilon_{\text{Fenster}} \cdot \epsilon_{1-\text{neutr.}} \cdot \epsilon_{\text{detekt}} \cdot \epsilon_\alpha = 0,256 \quad (5.20)$$

bestimmt werden. Die maximale Effizienz an Nobelium kann unter Berücksichtigung der Prozesseffizienzen, die bei Anwendung der RADRIS-Methode zusätzlich zum direkten Transport auf den PIPS-Detektor einen Einfluss haben, dem Transport der Fusionsprodukte nach dem Abstoppen auf den PIPS-Detektor gleichgesetzt werden

$$\epsilon_{\text{tot-trans.}} = \frac{\epsilon_{\text{tot-RIS.}}}{\epsilon_{\text{Sammel-No}} \cdot \epsilon_{\text{EvapRIS}} \cdot \epsilon_{\text{Zerfall}}} \quad (5.21)$$

Hierbei ist  $\epsilon_{\text{Sammel-No}} = 0,88$  der Anteil an Nobeliumionen, die nach dem Abstoppen auf der Drahtoberfläche gesammelt werden können (vgl. Abschnitt 4.1.1),  $\epsilon_{\text{Zerfall}} = 0,85$  der Anteil an Nobelium, die bis zum Abdampfen vom Tantaldrabt noch nicht zerfallen sind,  $\epsilon_{\text{tot-trans.}} = 0,256$  die maximal erreichte Gesamteffizienz der Puffergaszelle im direkten Transport der Nobeliumkerne auf den PIPS-Detektor und  $\epsilon_{\text{tot-RIS.}} = 0,122$  die maximal erreichte Gesamteffizienz der Messapparatur mit der RADRIS-Methode (siehe Tabelle 5.7). Durch die Umstellung der Gleichung 5.21 nach  $\epsilon_{\text{EvapRIS}}$  ergibt sich eine maximal erreichte kombinierte Abdampf- und Ionisationseffizienz von

$$\epsilon_{\text{EvapRIS}} = (63,7 \pm 11,2)\%$$

Die experimentell bestimmte Effizienz  $\epsilon_{\text{EvapRIS}}$  liegt damit um einen Faktor vier höher als die in [52] bestimmte Effizienz für  $\epsilon_{\text{EvapRIS}}$  in Ytterbium.

Aus Gleichung 4.16 wird eine Gesamteffizienz von 7%, korrespondierend zu einer kombinierten Abdampf- und Ionisationseffizienz  $\epsilon_{\text{EvapRIS}} = 36,9\%$ , errechnet. Der extrapolierte Wert aus Gleichung 4.16 beschreibt zwar nicht die maximal erreichte Gesamteffizienz, liegt aber in guter Übereinstimmung mit der durchschnittlich erreichten Gesamteffizienz von 6,4% für  $^{254}\text{No}$ . Wahrscheinlich ist, dass die Gesamteffizienz von Ytterbium nicht unmittelbar nach einem Reinigungsprozess der Messapparatur und des Tantaldrabts (beschrieben in Absatz 5.2.2) gemessen wurde und somit nicht die maximale Effizienz zu dem Zeitpunkt

der Messung erreicht wurde.

Im Folgenden wird eine Erklärung die hohe gemessene Effizienz für RIS Messungen an  $^{254}\text{No}$  gegeben. Ein Grund der hohen Effizienz ist das Vorhandensein eines leicht zu sättigenden Übergangs, sodass eine sehr effiziente Populierung des angeregten Zustands bereits mit geringen Laserpulsintensitäten ( $3 \mu\text{J}/\text{cm}^2 \cdot \text{Puls}$ ) gewährleistet ist. Ein weiterer möglicher Grund für die hohe Effizienz bei Nobelium ist die Tatsache, dass mit einem nichtresonanten zweiten Schritt aus weiteren atomaren Übergängen heraus ionisiert werden kann, was die Ionisationseffizienz beeinflusst. Wie in Abschnitt 5.2.4 erklärt, kann zur Signalamplitude nicht nur der Singlett-P Zustand beitragen, sondern auch die tieferliegenden, vom Grundzustand optisch nicht anregbaren atomaren Zustände  $^3\text{D}_{1,2,3}$  und  $^3\text{P}_2$  könnten hierbei eine Rolle spielen.

Da die Gesamteffizienz der Methode jedoch abhängig ist von der Halbwertszeit des Elements, der generellen atomaren Struktur, die Übergangsstärke der atomaren Zustände und chemischen Effekten, die an der Oberfläche des Filaments auftreten können, kann diese nicht eins- zu eins auf weitere schwerere Elemente wie z.B. Lawrencium mit  $Z = 103$  oder Rutherfordium mit  $Z = 104$  übertragen werden.

Abschliessend wird eine Abschätzung der Menge an  $^{254}\text{No}$  gegeben, die zur Aufnahme der Resonanz in Abbildung 5.4 nötig waren. Die erwähnte Aufnahme wurde mit 10 Schritten und einer Messzeit pro Schritt von  $t_{\text{mess}} = 300 \text{ s}$  durchgeführt. Die Messungen wurden bei einer reduzierten Produktionsrate am Target von  $R_{\text{Target}} = 6/\text{s}$  durchgeführt. Umgerechnet auf eine Gesamtmesszeit von  $t = 3000 \text{ s}$  wurden am Target also

$$N_{\text{Target}} = R_{\text{Target}} \cdot 3000 = 18000$$

Nobelium-254 Atome produziert. Insgesamt wurden also zur Aufnahme des Resonanzspektrums in Abbildung 5.4 lediglich etwa 18000  $^{254}\text{No}$ -Atome benötigt.

# Kapitel 6

## Ausblick

In diesem Kapitel werden Möglichkeiten beschrieben, die das Ziel weiterer Spektroskopie an Nobelium ( $Z=102$ ) oder aber der Erweiterung der laserspektroskopischen Studien auf die schwersten Elemente Lawrencium ( $Z=103$ ) oder Rutherfordium ( $Z=104$ ) dienen.

### 6.1 Weitere Spektroskopie an Nobelium

Wie in der Arbeit gezeigt wurde, lässt sich die Puffergaszelle mit einer konstant hohen Effizienz während eines Experiments bedienen. Dies sollte in zukünftigen spektroskopischen Untersuchungen an Nobelium in vielerlei Hinsicht genutzt werden. Im Folgenden werden einige Vorschläge zur möglichen zukünftigen Messkampagne an Nobelium gegeben.

#### 6.1.1 Suche nach weiteren atomaren Linien in Nobelium mit der RADRIS Methode

Neben dem gefundenen Übergang werden weitere, optisch anregbare atomare Linien theoretisch vorhergesagt. Hierbei handelt es sich zum Beispiel um die Triplet-P-Zustand  $[\text{Rn}]5f^{14}7s^2\ ^1S_0 \rightarrow [\text{Rn}]5f^{14}7s7p\ ^3P_1$ . Eine Vorhersage der Niveaulagen wird in Tabelle 6.1 gegeben: Analog zur Suche nach dem Singlett-P-Zustand kann auch hier ein zweistufiges Anregungs-

Tabelle 6.1: Theoretische Vorhersagen des Triplet-P Zustands in Nobelium. Hierbei bezieht sich die Wellenzahl auf den  $P_1$ -Zustand. Die Unsicherheit der jeweiligen theoretischen Angabe liegt für die Triplet-Zustände bei  $\pm 300\text{cm}^{-1}$ .

Termbezeichnung der atomaren Zustands	Wellenzahl $\bar{\nu}_1$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]	Referenz
$[\text{Rn}]5f^{14}7s7p\ ^3P_1$	20454	[5]
$[\text{Rn}]5f^{14}7s7p\ ^3P_1$	21329	[7]
$[\text{Rn}]5f^{14}7s7p\ ^3P_1$	21156	[8]

schema mit einer nichtresonanten Ionisation, wie in Abschnitt 2.3.1 erläutert, angewendet werden. Ein möglicher, zweistufiger Anregungsprozess würde aus Farbstofflasern, die erneut das Laserlicht für den ersten Anregungsschritt  $\bar{\nu}_1$  liefern, und einem Excimerlaser, der UV Laserlicht der Wellenlänge 248 nm für den zweiten Schritt zur Verfügung stellt, bestehen. Die Scanbereiche wären bei der Suche nach dem atomaren Übergang  $[\text{Rn}]5f^{14}7s^2$

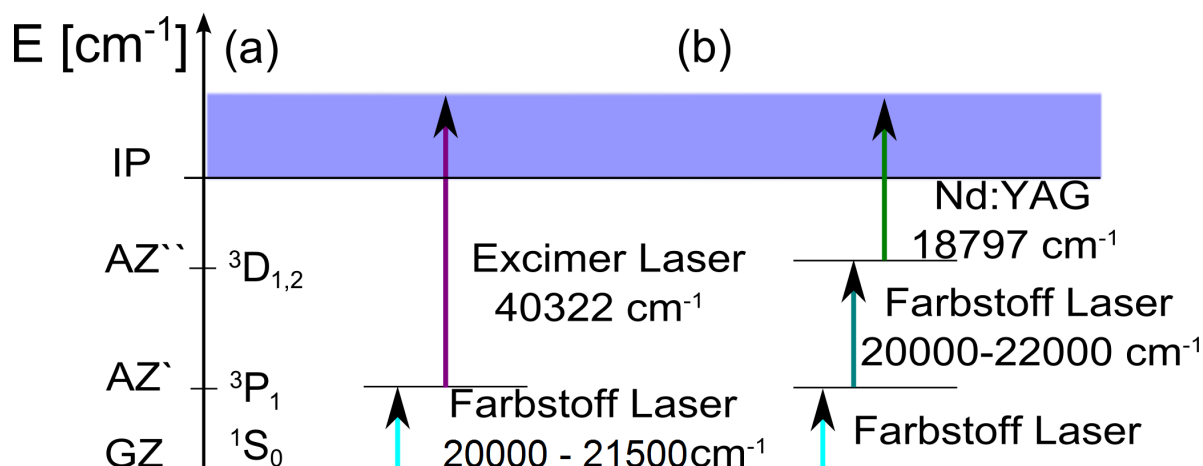


Abbildung 6.1: Anregungsschema für die Suche nach weiteren atomaren Zuständen in Nobelium.

$^1S_0 \rightarrow [Rn]5f^{14} 7s7p \ ^3P_1$  zwischen  $20000 \text{ cm}^{-1} \leq \bar{\nu}_1 \leq 21500 \text{ cm}^{-1}$  (dargestellt in Abbildung 6.1). In diesem Bereich eignen sich die Farbstoffe Coumarin 307 und Coumarin 153 mit einer Konversionseffizienz bis zu 18% bzw. 17% [99]. Der zweite nichtresonante Anregungsschritt  $\bar{\nu}_2$  muss von einem Excimerlaser mit einer Emissionswellenlänge von 248 nm bereitgestellt werden, da mit einer Emissionswellenlänge von 351 nm die Bedingung

$$E_{IP} < \bar{\nu}_1 + \bar{\nu}_2$$

nicht mehr erfüllt ist und es somit nicht zu einer Photoionisation kommen kann. Nach einer erfolgreichen Identifikation der zweiten atomaren Linie in Nobelium könnte ein weiteres Vorgehen darin bestehen, einen dreistufigen Anregungsprozess auf der Suche eines weiteren Zwischenzustands, welcher von dem gefundenen Triplett- P- Zustand angeregt werden kann, anzuwenden. Hierbei handelt es sich um die atomaren Linien  $[Rn]5f^{14} 7s7p \ ^3P_1 \rightarrow [Rn]5f^{14} 7s7d \ ^3D_{1,2}$ . Die theoretischen Vorhersagen für diese Zustände finden sich in Tabelle 6.2. Unter der Annahme, dass der Zwischenzustand  $[Rn]5f^{14} 7s7p \ ^3P_1$  eine Anregungswellenzahl von  $\bar{\nu}_1 \approx 20600 \text{ cm}^{-1}$  und die Triplett-D-Zustände im Bereich von  $43000 \text{ cm}^{-1}$  liegt, so sollte der zweite Anregungsschritt  $\bar{\nu}_2$  in einem Intervall von  $22000 \leq \bar{\nu}_2 \leq 23500 \text{ cm}^{-1}$  durchgestimmt werden. In diesem Bereich bietet sich die Nutzung der Laserfarbstoffe Stilbene 3 und Coumarin 120 mit einer maximalen Konversionseffizienz von 15 % bzw. 14 % an. Der dritte nichtresonante Anregungsschritt  $\bar{\nu}_3$  kann von einem Excimerlaser mit einer Emissionswellenlänge von 351 nm bzw. von einem Nd:YAG Laser mit der frequenzverdoppelten (SHG) Wellenlänge von 532 nm bereitgestellt werden, so dass

$$E_{IP} < \bar{\nu}_1 + \bar{\nu}_2 + \bar{\nu}_3.$$

Tabelle 6.2: Theoretische Vorhersagen der Triplet-D Niveaus in Nobelium. Hierbei bezieht sich die erste Wellenzahl auf den  $D_1$  und die zweite Wellenzahl auf den  $D_2$ - Zustand. Die Unsicherheit der theoretischen Modelle werden mit  $\pm 300 \text{ cm}^{-1}$  angegeben.

Termbezeichnung des atomaren Zustands	Wellenzahl $\bar{\nu}_1 [\text{cm}^{-1}]$	Referenz
$[\text{Rn}]5f^{14} 7s7d \ ^3D_{1,2}$	42726/42758	[5]
$[\text{Rn}]5f^{14} 7s7d \ ^3D_{1,2}$	43522/43581	[8]

Die experimentelle Identifizierung weiterer Zustände ermöglicht eine weitere genauere Überprüfung der theoretischen Modelle und erlaubt auf Basis der experimentellen Daten eine Verbesserung der theoretischen Modelle.

Die Effizienz dieses Drei-Schritt-Anregungsschema kann mit Einschränkungen in der gleichen Größenordnung liegen, sofern einerseits beide resonanten Anregungsschritte in den Triplet-P und Triplet-D Zustand zusätzlich zum nichtresonanten Schritt in das Kontinuum gesättigt sind. Verluste können lediglich durch energetische Dämpfung und Relaxation in tieferliegende Zustände auftreten. Die Suche nach den hochliegenden Triplet-D Zuständen wäre wesentlich ineffizienter, wenn man von dem Singlett-P Zustand aus starten würde, da hier, wie in Kapitel 5.2.4 gezeigt, erhebliche Verluste durch Umpumpprozesse in den tieferliegenden Triplet-D Zustand auftreten.

### 6.1.2 Bestimmung des Ionisationspotentials in Nobelium mit der RADRIS Methode

Ausgehend von der gefundenen und in dieser Arbeit charakterisierten atomaren Linie konnten mehrere Rydbergzustände identifiziert werden. Nach Abschluss der Analyse der vorhandenen Daten kann mit einem Rydberg-Ritz Fit das Ionisationspotential bestimmt und mit Hilfe des Quantendefekts eine Serienzuordnung durchgeführt werden. Jedoch ist zum jetzigen Zeitpunkt nicht endgültig geklärt, welchem Startpunkt die Rydbergmitglieder zugeordnet werden können. Eine Klärung dieses Sachverhalts (vgl. Abschnitt 5.2.6) lässt sich in einem weiteren Experiment an Nobelium lösen. Hierbei geht es darum, dass man eine mögliche, zweite Serie an Rydbergzuständen unterhalb der bereits gefundenen Serie aufnimmt. Der zweite Anregungsschritt kann dabei innerhalb eines Wellenzahlenbereichs von  $22800 \leq \bar{\nu}_2 \leq 23500 \text{ cm}^{-1}$  verstimmt werden. Als Laserfarbstoff bietet sich hier erneut die Nutzung von Coumarin 120 mit einer Konversionseffizienz bis zu 14% [109] an.

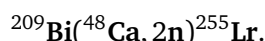
Findet man während den Messungen Rydbergzustände, die zu verschiedenen Serien gehören, lässt sich aufgrund der Unterschiede in der Anregungswellenzahlen und in der Rydbergkonvergenz der Abstand zwischen den beiden atomaren Übergängen bestimmen, womit die energetische Lage von niedrigliegenden Zuständen gerader Parität untersucht werden kann, welche nicht optisch angeregt werden können. Sofern dann klar ist, von welchem Zustand aus die jeweiligen Rydbergzustände aus angeregt werden, kann mit Hilfe von Rydbergzuständen der jeweiligen Serie die Lebensdauer des Singlett-P und des Triplet-D Zustands



durch zeitliche Verzögerung der beiden Laserpulse direkt gemessen werden. Dies erlaubt dann im weiteren Verlauf eine präzise Angabe des Ionisationspotentials bis auf Unsicherheiten von einigen  $\text{cm}^{-1}$  (vgl. Abschnitt F).

### 6.1.3 Suche nach atomaren Übergängen in Lawrencium und Rutherfordium

Im Fall von Lawrencium wird das Isotop  $^{255}\text{Lr}$  mit einer Halbwertszeit von 31.1 Sekunden und mit etwa 85% der Zerfälle in Form der Emission eines  $\alpha$ -Teilchens favorisiert. Produzieren lässt es sich mit der Bestrahlung eines Bismuth-Targets mit Kalzium-48 Partikeln mit einem Wirkungsquerschnitt von  $\sigma(^{255}\text{Lr}) \approx 400\text{nb}$  [51]



Vergleicht man die Wirkungsquerschnitte mit dem von  $^{254}\text{No}$ , so liegt dieser etwa einen Faktor 5.5 unter dem Wert von  $^{254}\text{No}$ , sodass etwa 3 /s  $^{255}\text{Lr}$ -Ionen bei einem Strahlstrom von  $1\mu\text{A}_p$  am Target von SHIP produziert werden.

Bei der Spektroskopie von Lawrencium kann analog zu der in Nobelium verfahren werden. Zuerst muss mit Hilfe der in [173] beschriebenen experimentellen Methode die Desorptionsenthalpie von Lawrencium von Tantal oder Hafnium bestimmt werden. Gelingt dies, kann im nächsten Schritt die Niveausuche in Lawrencium starten. Hierbei empfiehlt es sich, analog zur Suche in Nobelium einen Zwei-Stufen-Ionisationsprozess zu verwenden. Als geeigneter optisch anregbarer Übergang empfiehlt sich die Suche nach dem  $[\text{Rn}]5f^{14} 7s^2 7p^2 \text{P}_{1/2} \rightarrow [\text{Rn}]5f^{14} 7s^2 8s^2 \text{S}_{1/2}$  in einem Wellenzahlbereich von  $19800\text{cm}^{-1} \leq \bar{\nu}_1 \leq 21000\text{cm}^{-1}$ , um die theoretischen Vorhersagen aus [8], [73] und [184] abzudecken.

Geht man von gleicher Effizienz aus wie bei Nobelium und passt lediglich den Zyklus an  $^{255}\text{Lr}$  an, erwartet man im Durchschnitt eine Zählrate von  $^{255}\text{Lr}$  mit etwa  $R_{\text{Lr}} = 0,058\text{ s}^{-1}$ . Im Falle der Resonanz würde man dann innerhalb von 100 Sekunden etwa 6  $^{255}\text{Lr}$  Alpha-zerfälle auf dem PIPS-Detektor erwarten. Mit einer konservativen Abschätzung und einer Gesamteffizienz von 1% läge die Zählrate bei 1  $^{255}\text{Lr}$  Alphazerfall in 100 Sekunden. Hierbei handelt es sich um erste vorsichtige Abschätzungen, da die Levelstruktur in Lawrencium deutlich zu Nobelium verschieden ist und es nicht sicher ist, ob der Abdampfprozess von Lawrencium von Tantal ähnlich effektiv ist wie im Fall von Nobelium. Sollte es mit Tantal nicht befriedigend gelingen, gibt es die Möglichkeit, das Übergangsmetall Hafnium zu testen. Da das chemische Homolog von Lawrencium, Lutetium eine andere Grundzustandskonfiguration als Lawrencium besitzt<sup>11</sup>, kann nicht von Lutetium auf ein ähnliches Verhalten von Lawrencium geschlossen werden. Blickt man weiter auf Rutherfordium, so erscheint eine vernünftige Durchführung von RADRIS-Messungen zum jetzigen Zeitpunkt aufgrund des Wirkungsquerschnitts von  $\sigma(^{257}\text{Rf}) = 15\text{nb}$  [51] und der daraus nochmal einen Faktor 15 geringeren Produktionsrate im Vergleich zu Lawrencium für aussichtslos. Für eine ausreichende Statistik müssten pro Wellenzahl mindestens 1000 s gescannt werden. Zudem stellt sich hinsichtlich der höher werdenden Abdampf Temperatur die Frage der Anwendbarkeit der Filamenttechnik.

<sup>11</sup>Lawrencium  $7s^2 7p^2 \text{P}_{1/2}$ , Lutetium  $6s^2 5d^2 \text{D}_{3/2}$  [185]

# Appendices

## Anhang A

### Bestimmung der Fasertransmission des ersten Anregungsschritts

Zur korrekten Bestimmung der Photonenflussdichte  $\Psi_1$  am Ort des Überlapps von Atomwolke und Laserinteraktionsvolumen während der Messung des Sättigungsverhaltens aus Abschnitt 5.2.4 wurde die Transmission der Multi-Mode Glasfaser (vgl. Kap. 3.2) bei einer Anregungswellenzahl von  $\bar{\nu}_1 = 29961,46\text{cm}^{-1}$  gemessen. Dazu wurde die Pulsenergie  $E_{\text{Laser}}$  des Farbstofflasers vor der Glasfaser und nach der Glasfaser  $E_{\text{MP}}$  mit einem pyroelektrischen Sensor und einem Oszilloskop ausgelesen. Insgesamt wurden die Laserpulsenergien für 8 Messpunkte ausgelesen und die jeweiligen gemessenen Werte vor und nach der Glasfaser in einem Graphen aufgetragen und mit einer linearen Funktion  $E_{\text{MP}} = m \cdot E_{\text{Laser}}$  angepasst. Die Transmission der Faser kann dann aus dem linearen Fit ermittelt werden:

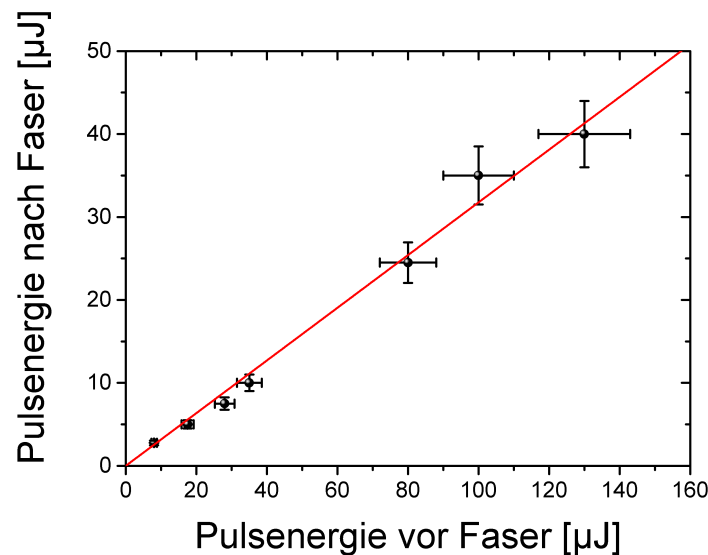


Abbildung A.1: Aufgetragen sind die gemessenen Werte vor der Faser und nach der Faser. Als Fehler wurde die Unsicherheit des pyroelektrischen Sensors genommen. Er wird seitens des Herstellers mit 10% angegeben.

$$T_{fiber} = m_{fit} = (0,318 \pm 0,009) \quad (\text{A.1})$$

Aus diesem in erster Näherung linearen Zusammenhang lässt sich bei bekannter Pulsenergie vor der Faser auf die Pulsenergie nach der Faser schliessen.

Die Transmission der Faser wurde dann während dem Experiment stichprobenartig mit einzelnen Messungen überprüft und lag zwischen 0,30 und 0,35.

## Anhang B

### Bestimmung der Photonenflussdichte

Die Photonenflussdichte lässt sich bestimmen, indem bei bekannter Wellenlänge, Intensitätsprofil des Farbstoff- und Excimerlasers und geometrischer Form der Laserflecke die Pulsenergie gemessen wird. Die Photonenflussdichte lässt sich mit Wissen der Pulsenergie folgendermassen bestimmen:

$$\Psi_x = \frac{E_x \cdot \lambda_x}{h \cdot c \cdot A_x} \quad (\text{B.1})$$

In Gleichung B.1 ist  $\Psi_x$  die Photonenflussdichte,  $E_x$  die gemessene Pulsenergie,  $A_x$  die gemessene Strahlfläche des Lasers x,  $h$  das plancksche Wirkungsquantum und  $c$  die Lichtgeschwindigkeit in Luft.

Vor den Messungen zur Sättigung wurde die Querschnittsfläche der Laser an der Zelle gemessen. Zur Bestimmung des Radius wurde vor dem Sichtfenster ein DIN A 4 Millimeterpapier befestigt und der Strahlfleck mit Hilfe eines Bleistifts mit einer Ungenauigkeit von 0,5 mm aufgezeichnet. Das Strahlprofil entsprach dabei einem intensiven, visuell auf einer Querschnittsfläche von

$$A_{\bar{v}_1} = (3,14 \pm 0,31) \text{ cm}^2$$

gleichverteilten Laserfleck, der von einem Halo mit einer Querschnittsfläche von

$$A_{Halo} = (11,34 \pm 1,13) \text{ cm}^2$$

umhüllt wurde. Analog zum ersten Schritt wurde die Querschnittsfläche des Excimers an der Zelle vermessen. Die Halbachsen des ellipsenförmigen Strahlprofils wurden erneut mit einem DIN A 4 Millimeterpapier am Sichtfenster bestimmt zu  $a = 1,33 \text{ cm}$  und  $b = 2,1 \text{ cm}$ . Die Fläche ergibt sich dann zu

$$A_{v_2} = 2,1 \times 1,33 \times \pi = (8,75 \pm 1,03) \text{ cm}^2$$

Die Energie eines Photons ist wellenlängenabhängig und kann mit dem Term  $\frac{h \cdot c}{\lambda_x}$  bestimmt werden. Tabelle B.1 listet die Photonenenergien für einige in der Arbeit genutzten Wellenlängen auf. Im Folgenden wird der Fehler abgeschätzt, der sich aus der Messunsicherheit des Photonenflusses durch den pyroelektrischen Sensor, aber auch durch die Unsicherheit in der Bestimmung des Strahlfleckradius ergibt.

Tabelle B.1: Photonenenergien für drei in dem Experiment häufig verwendete Laserwellenlängen.

Wellenlänge [nm]	Photonenenergie [J]
333,7616	$5,955 \cdot 10^{-19}$
351	$5,663 \cdot 10^{-19}$
398,91	$4,983 \cdot 10^{-19}$

Als Fehler wurde die Unsicherheit des pyroelektrischen Sensor angenommen. Diese liegt laut Hersteller bei 10 %. Der absolute Fehler bestimmt sich nach dem Gausschen Fehlerfortpflanzungsgesetz dann zu:

$$\Delta\Psi_x = \frac{E_x \cdot \lambda_x}{h \cdot c \cdot A_x} \cdot \sqrt{\left(\frac{\Delta E_x}{E_x}\right)^2 + \left(\frac{\Delta A_x}{A_x}\right)^2} \quad (\text{B.2})$$

Einsetzen der Werte für die Unsicherheiten ergibt

$$\Delta\Psi_x = \Psi_x \cdot \sqrt{0,01 + 0,01} = 0,14\Psi_x.$$

## Anhang C

### Rate in Fokalebene von SHIP

Die in der Fokalebene von SHIP ankommende  $^{155}\text{Yb}$ -Ionenrate  $R_{\text{SHIP}}^{\text{Ion}}$  lässt sich mit

$$R_{\text{SHIP}}^{\text{Ion}} = \frac{R_{\text{SHIP}}^{\alpha}}{\epsilon_{\Omega} \cdot \epsilon_{\alpha} \cdot \epsilon_{\text{makro}}} \quad (\text{C.1})$$

aufstellen, wobei  $R_{\text{SHIP}}^{\alpha}$  die Rate an detektierten  $^{155}\text{Yb}$ - $\alpha$ -Zerfällen mit dem SHIP-Streifendetektor ist. Bei der Umrechnung auf die Ionenrate sind folgende Effizienzen zu beachten:

- $R_{\text{SHIP}}^{\alpha} = \frac{N_{\text{SHIP}}^{\alpha}}{t_{\text{mess}}} = 119 \frac{1}{\text{s}} / 2,35 \frac{1}{\text{s}}$  - Die mit dem Streifendetektor gemessene Rate an  $^{155}\text{Yb}$  bzw.  $^{254}\text{No}$  - Alphazerfällen bei einem Strahlstrom von 12 nA<sub>p</sub> bzw. 1  $\mu\text{A}_p$ .
- $\epsilon_{\Omega} = 0,71/0,55$  - Raumwinkel der Detektion von  $^{155}\text{Yb}$   $\alpha$  bzw.  $^{254}\text{No}$  -Zerfällen des Streifendetektors mit der Unsicherheit  $\Delta\epsilon_{\Omega} = 0,02/0,01$
- $\epsilon_{\alpha} = 0,89/0,9$  -  $^{155}\text{Yb}/^{254}\text{No}$ -Ionen, die unter Aussendung eines  $\alpha$ -Teilchens zerfallen.
- $\epsilon_{\text{Makro}} = \frac{(1/F)-5\text{ms}}{1/F}$  - Detektion findet in der Strahl-aus Phase statt, die abhängig von der Wiederholfrequenz  $F$  des Partikelstrahls ist. Mit  $F = 45 \text{ Hz}$  ist  $\epsilon_{\text{Makro}} = 0,775$

Der Fehler aus den Gleichungen C.1 lässt sich mit Hilfe des Gausschen Fehlerfortpflanzungsgesetz bestimmen. Der Übersicht halber werden die einzelnen Fehlerquellen getrennt voneinander betrachtet und im letzten Schritt zusammengeführt.

1. Der statistische Fehler in der Zählrate der Alphazerfälle  $\Delta R_{\text{SHIP}}^{\alpha} = \frac{\sqrt{N_{\text{SHIP}}^{\alpha}}}{t_{\text{mess}}}$  führt zu einem Beitrag zum Fehler von  $\Delta R_{\text{Stat-SHIP}}^{\text{Ion}}$ :

$$\Delta R_{\text{Stat-SHIP}}^{\text{Ion}} = \Delta R_{\text{SHIP}}^{\alpha} \cdot \frac{1}{\epsilon_{\Omega} \cdot \epsilon_{\alpha} \cdot \epsilon_{\text{makro}}} \quad (\text{C.2})$$

2. Die Unsicherheit in der Bestimmung des Raumwinkels  $\Delta\epsilon_{\Omega}$  beschreibt der Term  $\Delta R_{\epsilon_{\Omega}-\text{SHIP}}^{\text{Ion}}$ :

$$\Delta R_{\epsilon_{\Omega}-\text{SHIP}}^{\text{Ion}} = \Delta\epsilon_{\Omega} \frac{R_{\text{SHIP}}^{\alpha}}{(\epsilon_{\Omega})^2 \cdot \epsilon_{\alpha} \cdot \epsilon_{\text{makro}}} \quad (\text{C.3})$$

Entsprechend ergibt sich der gesamte Fehler zu:

$$\Delta R_{\text{SHIP}}^{\text{Ion}} = \sqrt{(\Delta R_{\text{Stat-SHIP}}^{\text{Ion}})^2 + (\Delta R_{\epsilon_{\Omega}-\text{SHIP}}^{\text{Ion}})^2} \quad (\text{C.4})$$

Mit Gleichung C.1 wurde mit den erwähnten Effizienzen bei einem Strahlstrom von 300 nA<sub>p</sub> eine einkommende Rate an <sup>155</sup>Yb-Ionen zu

$$R_{\text{SHIP}}^{\text{Ion-Yb}} = (6080 \pm 582)/s \quad (\text{C.5})$$

bestimmt.

Analog wurde auf diese Weise die <sup>254</sup>No - Ionenrate bei einem Strahlstrom von 1 μA<sub>p</sub> berechnet zu

$$R_{\text{SHIP}}^{\text{Ion-No}} = (6,14 \pm 0,52)/s \quad (\text{C.6})$$



## Anhang D

### Die Off-line Puffergaszelle

Die Off-line Messapparatur besteht aus einem CF63-Kreuzstück mit zwei Schaufenstern aus UV-Quarzglas, ein Flansch für eine Filamenthalterung und ein Flansch für eine Detektorvorrichtung. Die weiteren Anschlüsse werden zur Montage einer Turbomolekularpumpe und zur Installation der Gasversorgungslinie plus Druck-Meßröhre benötigt. Grafisch dargestellt wird die Off-line Puffergaszelle in Abbildung D.1 Die Filamenthalterung besteht aus zwei

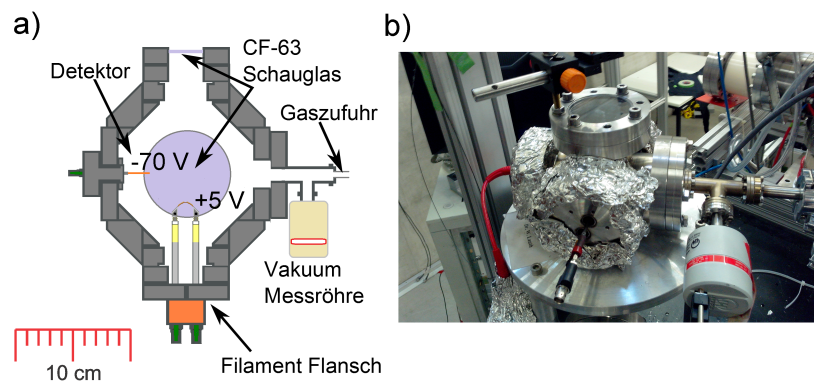


Abbildung D.1: Dargestellt ist die off-line Puffergaszelle, als a) 2-D Top Horizontalschnitt und in b) als Foto. Als Detektor fungiert ein dünner Kupferdraht, der auf einem Potential von -70 V gehalten wird. Zwei Schaugläser aus Quarzglas bieten die Möglichkeit, die Laser zweidimensional einzuschießen.

Vakuumstromdurchführungen, auf denen ein montierter Aufsatz die Fixierung von Folien und Drähten erlaubt.

Während im on-line Aufbau die Detektion mittels charakteristischer Alpha-Zerfälle geschieht, findet der Nachweis der erfolgreichen Ionisation über die Detektion von Ionen in Form von Ladungen statt, die auf dem Detektor gesammelt werden. Als Detektor wird in diesem Aufbau ein dünner Kupferdraht verwendet, der als Sammeloberfläche für Ionen, die im Gasvolumen gespeichert sind, dient. Eine geringe Kapazität des Kupferdrahts sorgt in Verbindung mit einem kurzen Verbindungskabel zum ladungssensitiven Vorverstärker für ein hohes Signal-zu-Rausch Verhältnis.

Typische Werte werden in Tabelle D.1 angegeben. Durch die Potentialdifferenz zwischen Filament und Detektor werden die Ionen dann auf dem Detektorkupferdraht gesammelt und

Tabelle D.1: Die Potentialwerte, die während den Experimenten in der Off-line Messapparatur angelegt werden.

Bauteil	Potential [V]
Detektorkupferdraht	-70
Filamentfolie/draht	+5

ihre Ladung detektiert. Betrieben wird die Off-Line Messapparatur mit einem Gasdruck von 0- 100 mbar Argon 5.0.

Für alle Messungen in der Off-line Zelle wurde das Trägerfilament, bestehend aus einem Tantalstreifen, mit zwei Ytterbiumstreifen überdeckt und mit einem Pulsstrom geheizt. Das Laserlicht wurde über Multimode Glasfaser aus dem Laserlabor zum Experimentierplatz transportiert und mit einer UV-linse mit einer Brennweite von 38 mm planparallel in die Off-Line Messapparatur eingeschossen. Der zeitliche Überlapp wurde mit einer Fotodiode untersucht und gegebenenfalls angepasst. Der Vorteil an der Detektion der Ladung ist, dass man auch stabile Elemente zur Untersuchung heranziehen kann. Jedoch werden aufgrund der Insensitivität der Methode große Mengen an Filamentmaterial benötigt.

## Anhang E

### Off-line Messungen mit nat. Ytterbium (Yb)

In diesem Kapitel werden Experimente in einer kleinen Ar - gasgefüllten Puffergaszelle<sup>12</sup> mit natürlich vorkommenden Ytterbium präsentiert. Hierzu zählen unter anderem Messungen zur räumlichen Verteilung der abgedampften Atome in Abhängigkeit des Puffergasdrucks und der Filamenttemperatur. Bei der Bestimmung des Druckeinflusses auf die Position der abgedampften Atome wurde die Filamenttemperatur bei  $T_{\text{Fil}} = 1050 \text{ }^{\circ}\text{C}$  konstant gehalten und der Druck auf 0,5 und 40 mbar eingestellt. Bei der Variation der Filamenttemperatur wurde der Druck innerhalb der Messapparatur bei 10 mbar fixiert und die Filamenttemperatur bei 1090 und 1205  $^{\circ}\text{C}$  eingestellt. Als Anregungslaser wurde ein Farbstofflaser mit dem Laserfarbstoff Exalite 398 auf der Anregungswellenzahl  $\bar{\nu}_1 = 25068,2 \text{ cm}^{-1}$ , mit der der Singlett-P-Zustand  $[\text{Xe}]4f^{13} 6s6p \text{ }^1\text{P}_1$  angeregt werden kann, verwendet. Als Ionisationslaser kam ein Excimerlaser, betrieben bei einer Emissionswellenzahl von  $\bar{\nu}_2 = 28490 \text{ cm}^{-1}$ , für Szenario (a) in Abbildung 4.5 zum Einsatz. Die durchschnittlichen Pulsintensitäten der Laser waren für die Anregungslaser  $I_{\bar{\nu}_1} = 14,16 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  und  $I_{\bar{\nu}_2} = 283,28 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  für den Ionisationslaser. Der Aufbau und die Betriebsparameter der off-line Messapparatur werden in Anhang D detailliert eingeführt.

Der Laserstrahlfleck wurde für beide Anregungsschritte  $\bar{\nu}_1$  und  $\bar{\nu}_2$  auf eine Grösse von  $0,78 \text{ cm}^2$  (einem Durchmesser von 1 cm entsprechend) mit einer Blende reduziert. Mit Hilfe einer Einkoppelvorrichtung inklusive Verstellern in x- und y- Ebene ist die Position des Laserflecks insgesamt 25 mal verschoben worden, wie in Abbildung E.1 schematisch dargestellt. Für jeden dieser Punkte wurde die Menge an laserinduzierten  $\text{Yb}^+$  - Ionen für 100 s gemessen. Anhand der Menge an  $\text{Yb}^+$  - Ionen lassen sich dann Aussagen zur optimalen Positionierung des Lasers treffen, um das räumliche Volumen der abgedampften Atome effizient auszuleuchten.

Der Einfluss des Gasdrucks wird in Abbildung E.2 dargestellt. Anhand des laserinduzierten  $\text{Yb}^+$  - Ionensignals konnte die Atomwolke bei einem Puffergasdruck von 0,5 mbar innerhalb eines Volumens mit dem Durchmesser von etwa 3 cm in einem Abstand von 2 cm zum Filament lokalisiert werden. Hierbei befindet sich die Atomwolke in der gleichen Höhe wie das Filament. Mit Erhöhung des Drucks auf 40 mbar verschiebt sich die Atomwolke in vertikaler Ebene um etwa 1,5 cm nach oben. Gleichzeitig erhöht sich das  $\text{Yb}^+$  - Ionensignal durch einen effizienteren Transport zum Detektor. Diese Verschiebung kann in erster Näherung durch einsetzende Konvektion in dem dichteren Gas erklärt werden.

Bei einer Filamenttemperatur von 1090 $^{\circ}\text{C}$  wurde die Atomwolke in einer Entfernung von

---

<sup>12</sup>nachfolgend als off-line Puffergaszelle bezeichnet

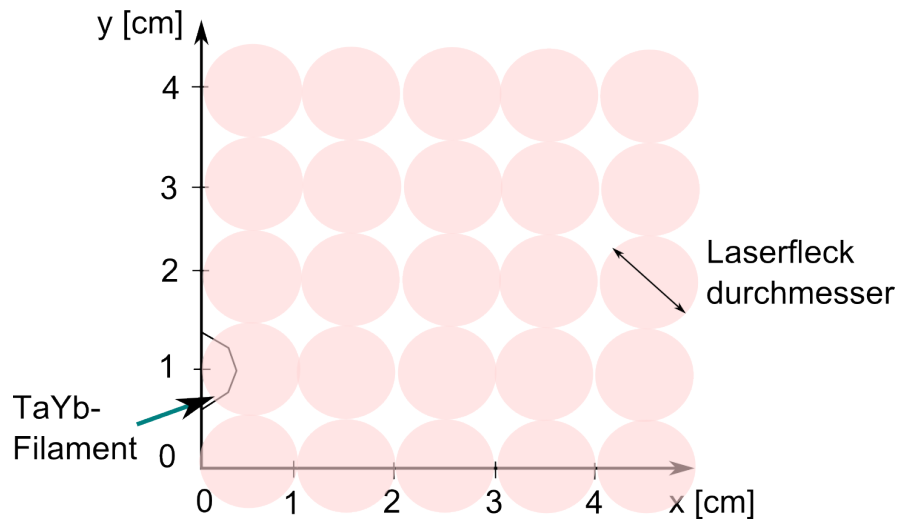


Abbildung E.1: Messprinzip zum Studium der räumlichen Verteilung. Die transparenten roten Kreise symbolisieren dabei die 25 Messpunkte, die jeweils zum Studium der Druckabhängigkeit und der Temperaturabhängigkeit aufgenommen worden sind. Beide Anregungsschritte hatten einen Strahldurchmesser von 1 cm.

2 cm zum Filament in horizontaler Ebene mit einem Volumen des Durchmessers 2 cm lokalisiert, wie in Abbildung E.3 zu sehen ist. Durch die Erhöhung der Temperatur auf 1205 °C wurde die Atomwolke bei den Koordinaten  $x = 2$  cm und  $y = 3$  cm lokalisiert. Dies entspricht einer Positionsänderung von 1,5 cm in vertikaler Ebene. Der Anstieg des  $\text{Yb}^+$  - Ionensignals ist durch die Erhöhung der Menge an freigesetzten Yb-Atomen, die für die resonante Ionisation zur Verfügung gestellt wird, bedingt.

Die optimale Position der Laserstrahlen zu der Atomwolke verschiebt sich also mit steigendem Druck und steigender Temperatur in vertikaler Richtung durch Konvektion und muss daher sorgfältig durch eine Optimierung des RIS-Signals erst gefunden werden. Sobald ein optimaler Überlapp der Laserstrahlen zur Atomwolke erreicht worden ist, müssen Filamenttemperatur und der Gasdruck zur Erhaltung der Messeffizienz ständig observiert werden, da selbst kleinere Abweichungen der Filamenttemperatur und des Gasdrucks in Effizienzeinbußen münden, insbesondere im Hinblick auf RIS an Nobelium, wo nur wenige Atome pro Sekunde zur Verfügung stehen.

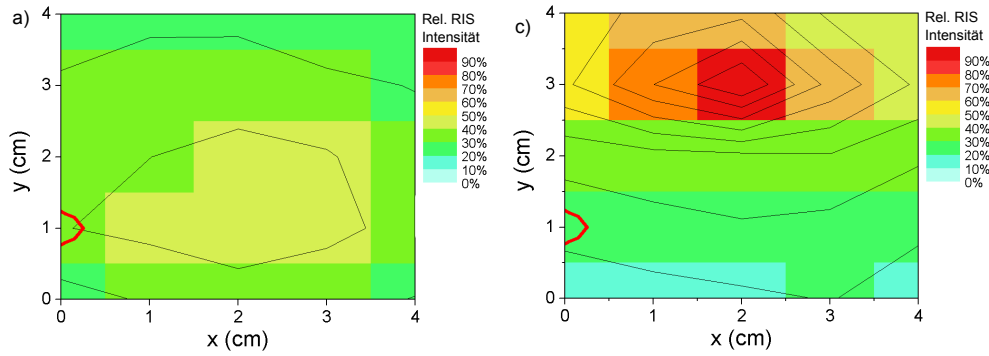


Abbildung E.2: Normiertes RIS Signal in der Umgebung des Filaments gemessen in Abhängigkeit des Puffergasdrucks bei (a) 0.5 mbar und (b) 40 mbar. Die Temperatur wurde bei 1060 °C konstant gehalten. Verwendet wurde ein zwei-stufiges Anregungsschema an nat.Yb wie in Abbildung 4.5 angegeben. Die Laserpulsintensitäten lagen bei  $I_{\bar{\nu}_1} = 14,16 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  bzw.  $I_{\bar{\nu}_2} = 283,28 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  und die Anregungswellenzahl war  $\bar{\nu}_1 = 25068,2 \text{ cm}^{-1}$  und  $\bar{\nu}_2 = 28490 \text{ cm}^{-1}$ . Pro Messpunkt wurde das RIS Signal für 100 s aufgenommen. Die Fläche des Laserflecks wurde zu  $0,78 \text{ cm}^2$  bei einem Durchmesser von 1 cm bestimmt.

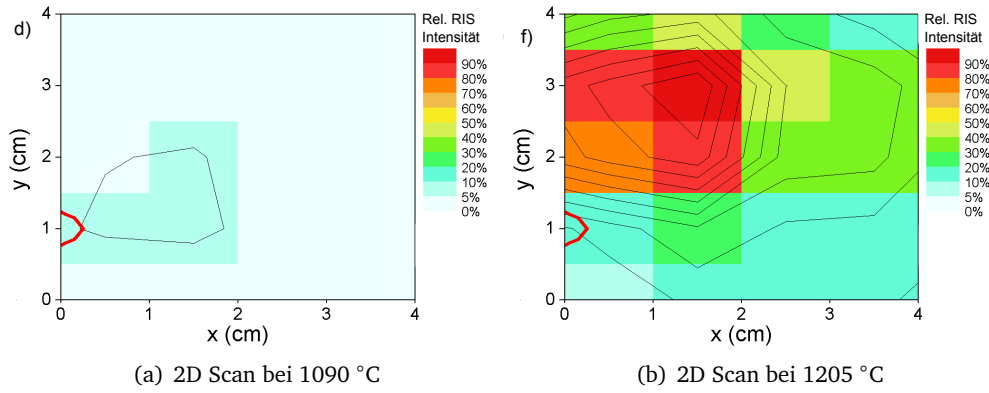


Abbildung E.3: Normiertes RIS Signal in der Umgebung des Filaments gemessen in Abhängigkeit der Filamenttemperatur bei (a) 1090 °C und (b) 1205 °C. Der Druck wurde bei einem Wert von 10 mbar konstant gehalten. Für jeden Messpunkt wurde das RIS Signal für 100 s registriert. Die Laserpulsintensitäten wurden zu  $I_{\bar{\nu}_1} = 14,16 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  bzw.  $I_{\bar{\nu}_2} = 283,28 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  bestimmt. Die eingestellten Anregungswellenzahlen waren  $\bar{\nu}_1 = 25068,2 \text{ cm}^{-1}$  und  $\bar{\nu}_2 = 28490 \text{ cm}^{-1}$ . Die Fläche des Laserflecks wurde zu  $0,78 \text{ cm}^2$  bei einem Durchmesser von 1 cm bestimmt.

## Anhang F

### Rydbergserien des Singlett-P Zustands bei verschiedenem Puffergasdruck

Normalerweise werden Rydbergserien im Vakuum gemessen und mit Hilfe der Rydberg-Ritz Formel das entsprechende Ionisationspotential extrahiert. Die RADRIS- Methode erlaubt allerdings aufgrund des notwendigen Puffergas zum Abstoppen der Fusionsprodukte vor dem Filamentdraht keine Messungen im Vakuum. Im Falle der Laserresonanzionisation gibt es neben der natürlichen Linienbreite noch die Dopplerbreite, die Verbreiterung durch das spektrale Intensitätsprofil des Lasers und die Druckverbreiterung, die die Breite der Rydbergzustände beeinflusst. Das spektrale Intensitätsprofil des Lasers wurde bei 400 nm zu  $\Delta f = 6,6 \pm 0,5$  GHz bestimmt. Die Dopplerbreite liegt bei einer Gastemperatur von  $\approx 400$  K bei 0,45 GHz und kann vernachlässigt werden. Zum Studium des Einflusses des Puffergases auf hochangeregte Rydbergzustände wurden die s-Rydbergserien des Singlett-P-Zustands und daraus mit der Rydberg-Ritz Formel das Ionisationspotential bestimmt und die Resonanzbreite eines hochliegenden Mitglieds der Rydberg-P-Serie des Singlett-P-Zustands bei verschiedenen Puffergasdrücken in nat. Yb gemessen. Für diese Messungen wurde das Anregungsschema, welches in Abbildung 4.5(b) gezeigt ist, verwendet. Durchgeführt wurden die Messungen bei Puffergasdrücken im Bereich von 2 bis 60 mbar und die Rydbergserien im Wellenzahlenbereich  $50190\text{--}50460\text{ cm}^{-1}$  bei Laserpulsintensitäten von  $I_{\tilde{\nu}_1} = 14, 16\text{ }\mu\text{J}/\text{cm}^2$  bzw.  $I_{\tilde{\nu}_2} = 222, 28\text{ }\mu\text{J}/\text{cm}^2$  mit einer Strahlfläche von  $0,78\text{ cm}^2$  aufgenommen. Die Datenpunkte der Rydbergzustände wurden mit einem Voigtprofil<sup>13</sup> angepasst und der Mittelpunkt der Datenanpassung als Referenzwert der jeweiligen Hauptquantenzahl  $n$  zugeordnet. Das Voigt-Profil wird hierbei mit dem folgenden Zusammenhang beschrieben [187]

$$V(x) = \int_{-\infty}^{\infty} G(x) \cdot L(x - x') dx' \quad (\text{F1})$$

beschrieben. Hierbei ist der Gaußanteil  $G(x) = \frac{e^{-x^2/2\sigma^2}}{\sigma\sqrt{2\pi}}$  mit  $\sigma$  als der Standardabweichung der Gaußverteilung und der Lorentzanteil  $L(x) = \frac{\gamma}{\pi(x^2 + \gamma^2)}$  mit  $\gamma$  als halbe Halbwertsbreite der Lorentzverteilung [188]. Die volle Halbwertsbreite lässt sich aus dem Lorentzanteil

$$f_{\text{Lorentz}} = 2 \cdot \gamma$$

---

<sup>13</sup>Faltung von einer Gaußkurve mit einer Lorentzkurve [186].

und Gaußanteil

$$f_{\text{Gauss}} = 2\sigma \cdot \sqrt{2 \cdot \ln(2)}$$

mit dem genäherten Zusammenhang

$$f_{\text{Voigt}} = 0,5346 \cdot f_{\text{Lorentz}} + \sqrt{0,2166 \cdot f_{\text{Lorentz}}^2 + f_{\text{Gau}}^2}$$

aus [187] bestimmen.

Die Anregungswellenzahl des ersten Schritts wurde bei  $\bar{\nu}_1 = 25068,2 \text{ cm}^{-1}$  gehalten und des zweiten Schritts zwischen  $\bar{\nu}_2 = 25121,8 - 25391,8 \text{ cm}^{-1}$  mit einer Schrittweite von  $0,25 \text{ cm}^{-1}$  verstimmt. bzw.  $I_{\bar{\nu}_2} = 221,23 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  Die Fläche der Laser betrug entsprechend jeweils  $A_{\nu_{1,2,\text{nonres}}} = 0,78 \text{ cm}^2$ . Als Messzeit pro Wellenzahlschritt wurde eine Zeit von 2 Sekunden gewählt und das erzeugte RIS-Signal registriert. Für die Bestimmung der Druckverbreiterung des hochliegenden Rydbergzustand ( $n=38$ ) mit einer Anregungswellenzahl von  $\bar{\nu}_1 + \bar{\nu}_2 = 50353,93 \text{ cm}^{-1}$  wurde der zweite Anregungsschritt um den Mittelpunkt des Rydbergzustand mit  $\pm 1 \text{ cm}^{-1}$  in beide Richtungen mit einer Schrittweite von  $0,1 \text{ cm}^{-1}$  bei einer Messzeit pro Schritt von 5 s verstimmt. Die Filamenttemperatur wurde während der Messungen bei  $1060^\circ\text{C}$  konstant gehalten. Weitere experimentelle Parameter wie Laserpulsenergie, Laserfleckdurchmesser und Spannungen wurden zu den vorhergehenden Messungen nicht verändert und finden sich in Abschnitt E.

In Abbildung F.1 wird ein Teilspektrum einer Rydbergserie bei einem Druck von 60 mbar gezeigt und Abbildung F.2 zeigt exemplarisch den hochangeregten Rydbergzustand ( $n=38$ ) mit der kombinierten Anregungswellenzahl  $\bar{\nu}_{1+2} = 50353,93 \text{ cm}^{-1}$  bei einem Puffergasdruck von 60 mbar.

An die Datensätze des Rydbergzustands ( $n=38$ ) bei  $\bar{\nu}_{1+2} = 50353,93 \text{ cm}^{-1}$  wurde dabei für die eingestellten Puffergasdrücke von 2, 20 und 60 mbar ein Voigtprofil angepasst. Die volle Halbwertsbreite (FWHM) des Voigtprofils  $f_{\text{Voigt}}$  ist dabei neben der Gaußbreite  $f_{\text{Gau}}$ , der Lorentzbreite  $f_{\text{Lorentz}}$  und des Mittelpunkts des Voigtprofils in Tabelle F.1 aufgetragen. Aus den Datenpunkte aus Tabelle F.1 lässt sich mit der Anpassung einer linearen Funktion

**Tabelle F.1:** Ergebnisse aus der Anpassung des Voigtprofils an den hochliegenden Rydbergzustand ( $n=38$ ) bei einem Puffergasdruck von 2, 20 und 60 mbar. Neben dem Mittelpunkt der Resonanz ist die Lorentzbreite  $f_{\text{Lorentz}}$ , die Gaussbreite  $f_{\text{Gau}}$  und die Voigtbreite  $f_{\text{Voigt}}$  [ $\text{cm}^{-1}$ ] angegeben.

p [mbar]	Mittelpunkt Voigtprofil [ $\text{cm}^{-1}$ ]	$f_{\text{Lorentz}}$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]	$f_{\text{Gau}}$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]	$f_{\text{Voigt}}$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]
2	$50354,47 \pm 0,14$	$0,23 \pm 0,04$	0,071	$0,26 \pm 0,04$
20	$50354,05 \pm 0,20$	$0,37 \pm 0,04$	0,071	$0,39 \pm 0,04$
60	$50353,93 \pm 0,22$	$0,47 \pm 0,05$	0,071	$0,49 \pm 0,05$

an die Halbwertsbreite gegenüber dem Puffergasdruck die Druckverbreiterung  $\Delta\text{FWHM}$  und an die Resonanzmitte gegenüber dem Puffergasdruck die Druckverschiebung  $\Delta E$  des

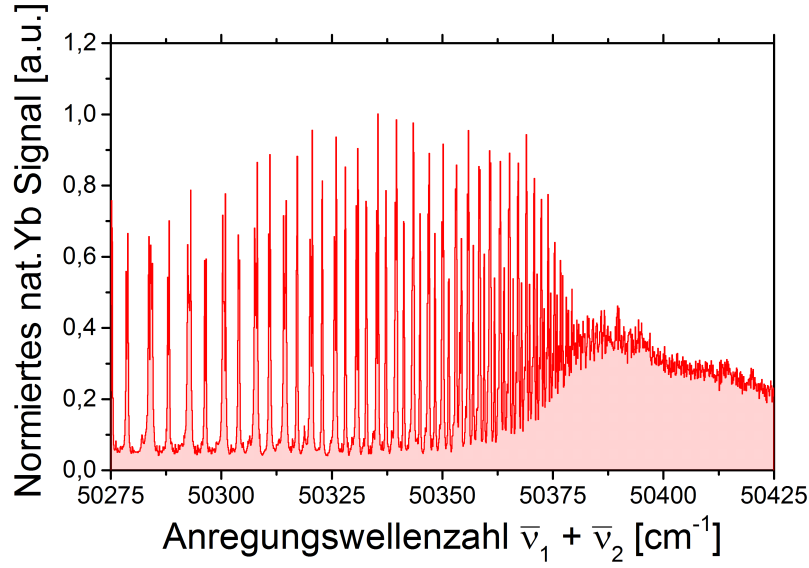


Abbildung F.1: Teilaufnahme der Rydbergserien des Singlett-P Zustands. Der erste Anregungsschritt lag bei  $\bar{\nu}_1 = 25068,2 \text{ cm}^{-1}$ , während der zweite Anregungsschritt zwischen  $25200 \leq \bar{\nu}_2 \leq 25358 \text{ cm}^{-1}$  mit einer Schrittweite von  $0,1 \text{ cm}^{-1}$  und einer Messzeit von 5 s verfahren wurde. Gemessen wurde bei einer Filamenttemperatur von  $1060 \text{ }^\circ\text{C}$  und einem Puffergasdruck von 60 mbar. Die Laserpulsenergie wurde zu  $I_{\bar{\nu}_1} = 14,16 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  bzw.  $I_{\bar{\nu}_2} = 221,23 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  bei einer Laserfleckfläche von  $0,78 \text{ cm}^2$  bestimmt.

hochliegenden Rydbergzustands bestimmen. Die gewonnenen Zusammenhänge haben sich zu

$$\Delta\text{FWHM} = p_{\text{Gas}} \cdot (116,7 \pm 35,1) \frac{\text{MHz}}{\text{mbar}} \quad (\text{F.2})$$

$$\Delta E = -p_{\text{Gas}} \cdot (298,8 \pm 158,4) \frac{\text{MHz}}{\text{mbar}} \quad (\text{F.3})$$

mit  $p_{\text{Gas}}$  als der gemessene Puffergasdruck in mbar.

Abbildung F.3 zeigt eine Rydberg-Ritz-Datenanpassung mit Gleichung 2.16 der s-Rydbergserie bei einem Puffergasdruck von 80 mbar Argon. Anlehnend an [51] wurden aus der Rydbergserie, wie eine beispielhaft in Abbildung F.1 gezeigt ist, die jeweiligen Zustände klassifiziert und die gemessene Wellenzahl extrahiert.

Die Ergebnisse der Datenanpassung an die jeweiligen Datensätze finden sich neben den Parametern A und B des Quantendefekts in Tabelle F.2. Aufgetragen ist die gesamte Anregungsenergie zur korrespondierenden Hauptquantenzahl  $n$  des jeweiligen Rydbergzustands. Berücksichtigt wurde hierbei der Quantendefekt bis zu der Korrektur zweiter Ordnung mit  $\delta = A + \frac{B}{(n-A)^2}$ , wobei A und B Parameter sind, die aus der Ritz Expansion bestimmt wer-



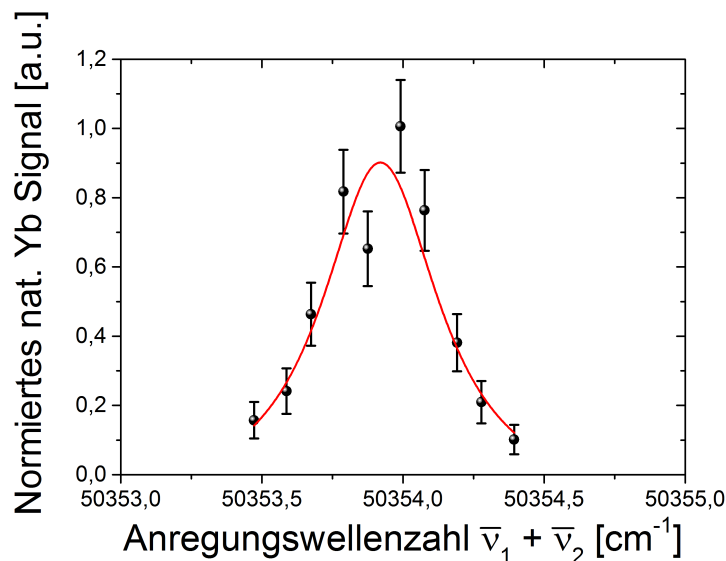


Abbildung F.2: Normiertes RIS Signal eines Rydbergzustands bei einer Anregungswellenzahl von  $\bar{\nu}_1 + \bar{\nu}_2 = 50353,93 \text{ cm}^{-1}$ . Die Resonanz wurde aufgenommen mit einer Schrittweite des zweiten Anregungsschritts von  $0,1 \text{ cm}^{-1}$  bei einem Puffergasdruck von 60 mbar und eine Filamenttemperatur von  $1060 \text{ }^\circ\text{C}$ . Die Laserpulsintensitäten lagen bei  $I_{\bar{\nu}_1} = 14,16 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  bzw.  $I_{\bar{\nu}_2} = 221,23 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  mit einer Laserfleckfläche von  $0,78 \text{ cm}^2$ . Zur Auswertung wurde ein Voigtprofil an die Datenpunkte angepasst. Jeweils 5 Sekunden wurde pro Messpunkt das Yb-RIS Signal aufgenommen und dann auf den Maximalwert normiert.

Tabelle F.2: Konvergenzwerte der Rydberg-Ritz-Datenanpassung in Abhängigkeit des Puffergasdrucks. Neben dem zum jeweiligen Druckwert korrespondierenden Konvergenzwert befinden sich die jeweiligen Korrekturparameter aus der Ritz Expansion A und B, die sich aus der Berücksichtigung des Quantendefekts ergeben.

Puffergasdruck [mbar]	Ionisationspotential [ $\text{cm}^{-1}$ ]	Parameter A	Parameter B
2	$50445,31^{+4,02}_{-1,53}$	$3,25 \pm 0,02$	$-10,58 \pm 9,98$
20	$50445,08^{+4,07}_{-1,77}$	$3,19 \pm 0,03$	$-27,81 \pm 19,47$
40	$50445,04^{+4,15}_{-2,05}$	$3,09 \pm 0,03$	$-97,92 \pm 23,71$
80	$50444,29^{+4,31}_{-2,61}$	$2,98 \pm 0,07$	$-132,12 \pm 41,06$

den (siehe dafür Abschnitt 2.2.4). Es wurden nur die Rydbergzustände berücksichtigt, deren Quantendefekt nicht aufgrund von Druckeinflüssen stark vom Serienverlauf abweicht. Das Ionisationspotential wurde somit für Druckwerte von 2, 20, 40 und 80 mbar aus der

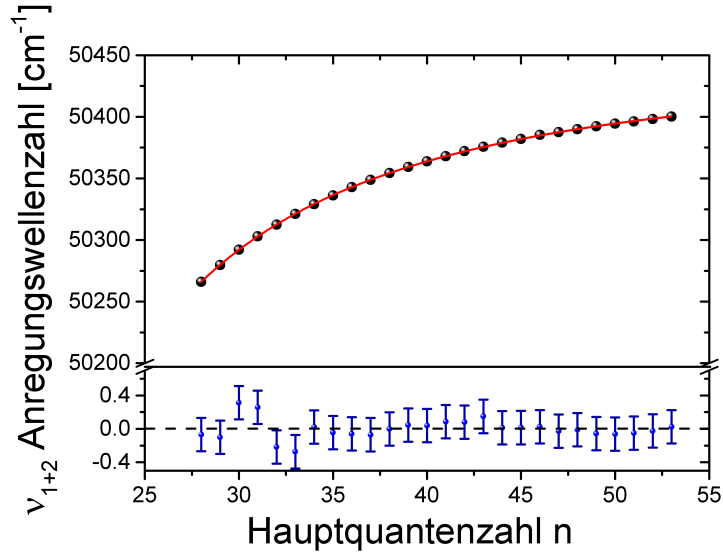


Abbildung F.3: Rydberg-Ritz Datenanpassung der s-Serie in nat.Yb bei einem Puffergasdruck von 80 mbar Argon. Neben der Datenanpassung sind die Residuen unterhalb der Messpunkte aufgetragen. Diese weisen eine maximale Abweichung von  $\pm 0,3 \text{ cm}^{-1}$  auf. Die Laserpulsintensität lag bei  $I_{\bar{\nu}_1} = 14,16 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  bzw.  $I_{\bar{\nu}_2} = 221,23 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  mit einer Laserfleckfläche von  $0,78 \text{ cm}^2$ . Die Temperatur des Filaments wurde bei  $1060 \text{ }^\circ\text{C}$  gehalten.

Rydberg-Ritz Formel extrahiert und in Tabelle F.2 mit den Parametern A und B gegenüber dem jeweiligen Druck notiert. Aus den Datenanpassungen hat sich eine Unsicherheit von  $\Delta f_{\text{Ritz}} = 0,75 \text{ cm}^{-1}$  durch die Abweichungen der errechneten Ionisationspotentiale zueinander ergeben. Ausserdem wurde bei dem Vergleich der Ionisationspotentiale mit dem Literaturwert von  $E_{\text{Lit}} = 50443 \text{ cm}^{-1}$  und des Rydbergzustands bei  $\bar{\nu}_{1+2} = 50353,93 \text{ cm}^{-1}$  einen positiven Offset von  $\Delta_{\text{ATOS}} = 2,5 \text{ cm}^{-1}$  festgestellt, welcher durch die Auslese der Wellenzahlen mit dem ATOS Wellenzahlenmeter in diesem Spektralbereich aufgetreten ist. Bei der Angabe des Ionisationspotentials müssen neben den vorherigen genannten Unsicherheiten die Abweichungen durch die Druckverbreiterung und der Druckverschiebung der Rydbergzustände beachtet werden. Generell ist zu beachten, dass der Offset lediglich auf die obere Grenze wirkt und die Druckverschiebung wichtig für die untere Grenze ist. Bei einem Druck von 80 mbar ist das Ionisationspotential von Ytterbium zu

$$E_{\text{IP}} = 50444,29^{+4,31}_{-2,61} \text{ cm}^{-1}$$

bestimmt worden. Ein Vergleich mit dem Literaturwert von  $E_{\text{Lit}} = 50443 \text{ cm}^{-1}$  ergibt eine Übereinstimmung im Rahmen des Fehlers.

Erheblich reduzieren lässt sich die Unsicherheit, indem man den Offset des Wellenzahlenmeters ATOS beseitigt oder ein anderes Wellenzahlenmeter nutzt.

# Literaturverzeichnis

- [1] W. Lauth et al., *Resonance Ionization Spectroscopy in a Buffer Gas Cell with Radioactive Decay Detection, Demonstrated Using  $^{208}\text{Tl}$* , Phys. Rev. Lett. 68, 1675 (1992).
- [2] H. Backe et al., *Radiation Detected Resonance Ionization Spectroscopy on  $^{208}\text{Tl}$  and  $^{242}\text{fAm}$* , Hyp. Int. 78, 35 (1993).
- [3] S. Hofmann and G. Münzenberg, *The discovery of the heaviest elements*, Gesellschaft für Schwerionenforschung mbH (GSI), D-64291 Darmstadt, Germany, 2000
- [4] S. Fritzsche, Eur. Phys. J. D 33, 15 (2005)
- [5] A. Borschevsky et al., Phys. Rev. A 75 , 042514 (2007)
- [6] P. Indelicato , *QED and relativistic corrections in superheavy elements.*, Eur. Phys. J. D 45, 155 - 170 (2007).
- [7] Y. Liu , *Atomic structure of the super-heavy element No I ( $Z=102$ )*, PHYSICAL REVIEW A 76, 062503 (2007).
- [8] V.A. Dzuba , *Atomic properties of superheavy elements No, Lr, and Rf*, PHYSICAL REVIEW A 90, 012504 (2014).
- [9] G. Münzenberg, M. Gupta, *Discoveries with cold heavy-ion fusion and shell stabilized nuclei around hassium*, Rom. Journ. Phys., Vol.57, Nos. 1-2, P399-406, Bucharest, (2012)
- [10] S. Hofmann and G. Münzenberg, *The discovery of the heaviest elements*, Gesellschaft für Schwerionenforschung mbH (GSI), D-64291 Darmstadt, Germany, 2000
- [11] M. Block et al., *Direct mass measurements above uranium bridge the gap to the island of stability*, Nature 463, 785-788, 2010
- [12] E. M. Ramirez et al., *Direct Mapping of Nuclear Shell Effects in the Heaviest Elements*, Science Vol. 337, issue 6099, pp. 1207-1210.
- [13] R.D. Herzberg, P.T. Greenlees, *In-beam and decay spectroscopy of transfermium nuclei.*, Progress in Particle and Nuclear Physics, Vol. 61, Issue 2, October 2008, Pages 674-720
- [14] Maria Goeppert-Mayer, *On closed shells in nuclei I*, Phys. Rev. 74: 235 (1948).
- [15] Maria Goeppert-Mayer, *On closed shells in nuclei II*, Phys. Rev. 75: 1969 (1949).

- 
- [16] Maria Goeppert-Mayer, J.H.D. Jensen, *Elementary Theory of Nuclear Shell Structure*, New York: John Wiley & Sons, 1955
- [17] M. Schädel, *Chemistry of Superheavy Elements*, Angew. Chem. Int. Ed. 45, 368-401 (2006).
- [18] Ch. E. Düllmann et al., *Chemical investigation of hassium (element 108)*, Nature 418, 859-862 (22 August 2002).
- [19] M. Schädel., *Superheavy element chemistry at GSI status and perspectives*, Eur. Phys. J. D, 45 (2007), p. 67-74
- [20] A. Yakushev et al., *Superheavy Element Flerovium (Element 114) Is a Volatile Metal*, Inorg. Chem. 53(3), 1624-1629 (2014).
- [21] S. Fritzsche, *Relativistische Theorie offenschaliger Atome*, Habilitationsschrift, Universität Kassel, 1996.
- [22] U. Kaldor and S. Wilson, *Theoretical Chemistry and Physics of Heavy and Superheavy Elements*, Springer-Verlag, New York (2004)
- [23] E.F. Worden et al., *Hyperfine Structure in the  $^{253}\text{Es}$  Emission Spectrum, III: Extension of the Line List, Levels of Es I and Es II, Nuclear Magnetic-Dipole and Quadrupole Moments.*, J. Opt. Soc. Am. 64(1), 77 (1974).
- [24] S. Köhler et al., *Determination of the First Ionization Potential of Actinide Elements by Resonance Ionization Mass Spectroscopy*, Spectrochim. Acta B 52, 717 (1997).
- [25] N. Erdmann et al., *Determination of the First Ionization Potential of Nine Actinide Elements by Resonance Ionization Mass Spectroscopy (RIMS)*, Journal of Alloys and Compounds 271- 273, 837 (1998).
- [26] M. Sewtz, *Optische Spektroskopie an Fermium ( $Z=100$ )*, Doktorarbeit, Mainz (2003).
- [27] P. Schwamb et al , *Entwicklung eines Detektors zum direkten massenselektiven Ionennachweis nach Resonanzionisationsspektroskopie in einer Puffergaszelle*, Dissertation, Institut für Physik, Universität Mainz, 1996.
- [28] T. K. Sato et al., *Measurement of the first ionization potential of lawrencium, element 103*, Nature 520, 209211 (09 April 2015).
- [29] P. Campbell, I. D. Moore, M.R. Pearson, *Laser spectroscopy for nuclear structure physics*, Progress in Particle and Nuclear Physics Volume 86, January 2016, Pages 127-180
- [30] Yu.Ts. Oganessian, *Study of heavy nuclei at FLNR (Dubna)*, Eur. Phys. J. D 45, 17-23 (2007).
- [31] H. Backe et al., *First Observation of a Resonance Ionization Signal on  $^{242m}\text{Am}$  Fission Isomers.*, Hyp. Int. 74, 47 (1992).

- [32] H. Backe et al., *Isotope Shift and Hyperfine Structure Measurements at the  $^{242f}\text{Am}$  Fission Isomer*, Hyp. Int. 97-98, 535 (1996).
- [33] H. Backe et al., *Isotope Shift Measurements for Superdeformed Fission Isomeric States*, Phys. Rev. Lett. 80(5), 920 (1998).
- [34] H. Backe et al., *Isotope Shift Measurement at  $^{244f}\text{Am}$* , Hyp. Int. 127, 35 (2000).
- [35] H. Backe et al., *Towards optical spectroscopy of the element nobelium ( $Z=102$ ) in a buffer gas cell*, Eur. Phys. J. D 45, 99-106 (2007).
- [36] E. McMillan, P. H. Abelson, *Radioactive Element 93*, Physical Review, 1940, 57, S. 1180-1186.
- [37] Alexander C.W., Halperin J., Walter R.L. und Bigelow J.E., *Reactor Production of  $^{252}\text{Cf}$  and Transcurium Isotopes*, Winter Annual Meeting of the American Nuclear Society, Washington, D.C. (1990).
- [38] Seaborg G.T. und Loveland W.D., *Transuranium Nuclei, Treatise on Heavy- Ion-Science*, Bd. 4, S. 255, Plenum Press, New York (1985).
- [39] G. Münzenberg, M. Gupta, *Discoveries with cold heavy-ion fusion and shell stabilized nuclei around hassium*, Rom. Journ. Phys., Vol.57, Nos. 1-2, P.399-406, Bucharest, (2012)
- [40] Hermann Haken, Hans-Christoph Wolf, *Atom- und Quantenphysik*, Kapitel 17.3, 2008
- [41] R. J. Silva, *Fermium, Mendelevium, Nobelium, and Lawrencium*, The Chemistry of the Actinide and Transactinide Elements, Third Edition, Springer, P.O. Box 17, 3300 AA Dordrecht, The Netherlands, 2006.
- [42] H. W. Gäggeler, *Reaktionsmechanismen zur Synthese schwerster Elemente aus Schwerionenreaktionen.*, PSI Bericht Nr.14, Oktober 1988.
- [43] J. J. Sakurai, San Fu Tuan, *Modern Quantum Mechanics*, Adison-Wesley Publishing, Reading (1994).
- [44] H. Atterling, W. Forsling, L. W. Holm, and B. Aström, *Production of the New Element 102*, Phys. Rev., 1957, 107 (5), S. 1460-1462.
- [45] <http://www.nndc.bnl.gov/chart/>, Nobelium.
- [46] Lester R. Morss, Norman M. Edelstein, Jean Fuger, *The Chemistry of the Actinide and Transactinide Elements*, S. 1638 (2008); 2006 and 2008 Springer Science + Business Media B.V., ISBN-10 1-4020-3598-5 (e-book).
- [47] C.W. Reich, Nuclear Data Tabelle, <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/nuclide.asp?iZA=1020254>, 2016.

- 
- [48] Lester R. Morss, Norman M. Edelstein, Jean Fuger, *The Chemistry of the Actinide and Transactinide Elements*, S. 1638 (2008); 2006 and 2008 Springer Science + Business Media B.V., ISBN-10 1-4020-3598-5 (e-book).
- [49] W. Reisdorf, Z. Phys. A 300, 227 (1981).
- [50] H.W. Gäggeler et al., Nucl. Phys. A 502, 561c (1989).
- [51] Fritz-Peter Heßberger, private Kommunikation, 2016.
- [52] Yu.Ts. Oganessian et al., Phys. Rev. C 64, 054606 (2001)
- [53] C.W. Reich, Nuclear Data Tabelle,  
<http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/nuclide.asp?iZA=700155>, 2016.
- [54] Niels Bohr, *The spectra of helium and hydrogen*, Nature. 92, 1914, S. 231-232
- [55] Walther Gerlach und Otto Stern, *Der experimentelle Nachweis der Richtungsquantelung im Magnetfeld*, Zeitschrift für Physik. 9, 1922, S. 349-352
- [56] B.H. Brandsen, C.J. Joachain, *Physics of Atoms and Molecules*, Kapitel 3-6, 1983
- [57] B.H. Brandsen, C.J. Joachain, *Physics of Atoms and Molecules*, Kapitel 2.5, 1983
- [58] Erwin Riedel und Hans-Jürgen Meyer, *Anorganische Chemie*, 11. Auflage, 2013.
- [59] F. Hundt, *Deutung der Molekelspektren, I und II*, Zeitschrift für Physik. 40, S. 742-764 (1927) und 42, S. 93-120 (1927).
- [60] J.P. Connerade, *Highly Excited Atoms*. Cambridge University Press, Cambridge (1998).
- [61] H.A. Bethe und R. Jackiw, *Intermediate Quantum Mechanics*, second edition W.A. Benjamin, New York, (1968).
- [62] H.-J. Kowalsky, G. O. Michler, *Lineare Algebra*, 11 ed., Walter de Gruyter, 1998.
- [63] W. Pauli, *Über den Zusammenhang des Abschlusses der Elektronengruppen im Atom mit der Komplexstruktur der Spektren*, Z. Phys. 31, 765-783 (1925)
- [64] W.B. Krätzig et al., *Tragwerke 2. Theorie und Berechnungsmethoden statisch unbestimmter Stabtragwerke*, Gabler Wissenschaftsverlage, 2004, ISBN 978-3540-67636-2, S. 232
- [65] C.E. Moore, *Atomic Energy Levels*, Natl. Bur. Stand. (USA) Circ. No. 467 (U.S. GPO, Washington, DC), Vol II. (1952) and Vol. III (1958)
- [66] E. Eliav and U. Kaldor, *Ground State Electron Configuration of Element 111*, Phys. Rev. Lett. Vol. 73, 24 (1994)
- [67] A.Borschevsky, Doktorarbeit, 2009

- [68] J.P. Desclaux, *Relativistic Multiconfiguration Dirac-Fock Package* - <http://dirac.spectro.jussieu.fr/mcdf/mcdf-theory/Mettec/mettec.html>, Centre d'Etudes Nuclaires de Grenoble 85 X, F-38041 Grenoble Cedex, France.
- [69] Ephram Eliav and Uzi Kaldor, *Relativistic Coupled Cluster Theory Based on the No-Pair Dirac-Coulomb-Breit Hamiltonian: Relativistic Pair Correlation Energies of the Xe Atom*, Int. Journal of Quant. Chem.: Quantum Chemistry Symposium 28, 205-214 (1994)
- [70] J. Cizek, J. Chem. Phys. 45, 4256 (1966).
- [71] J.-P. Malrieu, Ph. Durand, and J.-P. Daudey, J. Phys. A 18, 809 (1985).
- [72] A. Borschevsky et al. *Transition energies of atomic lawrencium*, Eur. Phys. J. D 45, 115 - 119 (2007).
- [73] S. Fritzsche et al., *The low-lying level structure of atomic lawrencium ( $Z=103$ ): energies and absorption rates*, Eur. Phys. J D, Vol. 45, 1, pages 107-113, 2007.
- [74] Uehling E.A., *Polarization Effects in the Positron Theory*, Phys. Rev., 48(1), 5563 (1935).
- [75] R. Beerwerth, private Kommunikation, 2016.
- [76] A. Borschevsky, private Kommunikation, 2016
- [77] Thomas F. Gallagher, *Rydberg Atoms*, Cambridge Univ. Press, Cambridge, 1. publ. edition, 1994
- [78] W.C. Martin, *Series formulas for the spectrum of atomic sodium (Na I)*. J. Opt. Soc. Am., 70(7):784, July 1980
- [79] G.W.F. Drake and R.A. Swainson, *Quantum defects and the  $1/n$  dependence of Rydberg energies: Second-order polarization effects*. Phys. Review A, Vol. 44, No.9, November 1991
- [80] The Nist Reference on Constants, Units, and Uncertainty, <http://physics.nist.gov/cgi-bin/cuu/Value?ryd>, 2011
- [81] M. J. Seaton, *Quantum defect theory*, Reports on Progress in Physics, 46(2):167, 1983
- [82] Weber K.H. und Sansonetti C.J., *Accurate Energies of  $nS$ ,  $nP$ ,  $nD$ ,  $nF$ , and  $nG$  Levels of Neutral Cesium*, Phys. Rev. A, 35(11), 4650 - 4660 (1987).
- [83] Lu-Fano and Shore B., *The Theory of Coherent Atomic Excitation*, Volume 1, Simple Atoms and Fields, Wiley (1990)
- [84] Ambartzumian T. und Letokhov V., *Selective Two-Step (STS) Photoionization of Atoms and Photodissociation of Molecules by Laser Radiation*, Appl. Opt., 11 (2), 354-358 (1972).



- 
- [85] Wolfgang Demtröder, *Laserspektroskopie, Grundlagen und Techniken*. 4. erweiterte und neubearbeitete Auflage, korrigierter Nachdruck. Springer, Berlin u. a. 2004.
- [86] R. Neugart, *Laser in Nuclear Physics - A Review*. Eur. Phys. J A 15 (2002).
- [87] V.S. Letokhov. *Laser Photoionization Spectroscopy* Academic Press, Inc., Orlando, San Diego, New York, Austin, Boston, Sydney, Tokyo and Toronto, 1987.
- [88] Karl Jousten (Hrsg.), *Wutz Handbuch Vakuumtechnik*, 7. Auflage Vieweg Verlag Braunschweig/Wiesbaden, Tabelle 17.6, S. 668
- [89] J. J. Sakurai, San Fu Tuan, *Modern Quantum Mechanics* ,Adison-Wesley Publishing, Reading (1994).
- [90] K. Bethge, Gertrud Walter, Bernhard Wiedemann, *Kernphysik - Eine Einführung - Kapitel 6*, 3 Auflage, Springer (2008).
- [91] E. Schrödinger, *Die Wellenmechanik*, Battenberg, Stuttgart 1963, DNB 454485557, Dokumente der Naturwissenschaft. Abteilung Physik; Bd. 3
- [92] F.Claude Cohen-Tannoudji, Jacques Dupont-Roc, Gilbert Grynberg, *Atom Photon Interaction ? Basic Processes and Applications*, 1 Auflage. Wiley-VCH, Weinheim 2004, ISBN 9780471293361.
- [93] W. Dermtröder, *Laserspektroskopie 2 - experimentelle Techniken*, Springer Verlag 6. Auflage, 2013
- [94] W.Ruster et al, *A Resonance Ionization Mass Spectrometer as an Analytical Instrument for Trace Analysis*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A 281, 547 (1989).
- [95] J. Blaise und J.F. Wyart, *Energy Levels and Atomic Spectra of Actinides, Band 20 of International Table of Selected Constants.*, Laboratoire Aime Cotton, Orsay, Paris, 1992.
- [96] F.S. Tomkins und M. Fred., *Electrodeless Discharge Tubes Containig Rare Earth and Heavy Element Halides.*, J. Opt. Soc. Am. 47(12), 1087 (1957).
- [97] A. Morbach. , *Experimentelle Entwicklung zur optischen Spektroskopie an Trans- Einsteinium Elementen*. Diplomarbeit, Institut für Kernphysik , Universität Mainz, 2001.
- [98] P. Kunz , *Resonanzionisations-Massenspektrometrie mit gepulsten und kontinuierlichen Lasern an Plutonium*. Dissertation, Institut für Kernphysik , Universität Mainz, 2004.
- [99] R. Ferrer et al , *In gas laser ionization and spectroscopy experiments at the Superconducting Separator Spectrometer(S<sup>3</sup>): Conceptual studies and preliminary design*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B 317 (2013) 570-581.
- [100] R. Ferrer et al , *In-gas-cell laser ionization spectroscopy in the vicinity of 100Sn: Magnetic moments and mean-square charge radii of N=50-54 Ag*, Physics Letters B, Volume 728, 2014, Pages 191 - 197.

- 
- [101] R. Ferrer et al., *In Gas Laser Ionization and Spectroscopy: A quest for the atomic and nuclear structure of very exotic nuclei*, Talk, LA3NET Conference 2015.
- [102] C. Grüning., *Spektroskopie und Ultrapurenanalyse von Plutonium mittels Resonanzionisations-Massenspektrometrie.*, Dissertation, Institut für Kernchemie, Universität Mainz, 2001.
- [103] W. Lauth et al., *Resonance Ionization Spectroscopy in a Buffer Gas Cell with Radioactive Decay Detection, Demonstrated Using  $^{208}\text{Tl}$* , Phys. Rev. Lett. 68, 1675 (1992).
- [104] H. Backe et al., *Radiation Detected Resonance Ionization Spectroscopy on  $^{208}\text{Tl}$  and  $^{242\text{f}}\text{Am}$* , Hyp. Int. 78, 35 (1993).
- [105] W. Dermtröder, *Laserspektroskopie 2 - experimentelle Techniken*, Springer Verlag 6. Auflage, 2013
- [106] N. Erdmann et al., *Determination of the First Ionization Potential of Nine Actinide Elements by Resonance Ionization Mass Spectroscopy (RIMS).*, Journal of Alloys and Compounds 271- 273, 837 (1998).
- [107] S. Köhler et al. , *Determination of the First Ionization Potential of Actinide Elements by Resonance Ionization Mass Spectroscopy*, Spectrochem. Acta B 52, 717 (1997).
- [108] Ulrich Brackmann, *Lambdachrome Laser Dyes 3rd Edition*, Lambda Physik AG, (2000)
- [109] Radiant Dyes, <http://www.radiant-dyes.com/index.php/products/laser-dyes/list-of-laser-dyes>, 2015
- [110] Gerthsen Laserphysik, Kapitel 15, p.833-834 *Helium-Neon-Laser und Gaslaser*
- [111] Lambda Physik, Excimer Laser EMG 101-104 MSC *Instruction Manual*, Lambda Physik AG, D-3400 Göttingen (1985)
- [112] Lambda Physik, Excimer Laser LPX Series 1xx-2xx *Instruction Manual*, Lambda Physik AG, D-3400 Göttingen (1995)
- [113] H. Backe, W. Lauth, M. Laatiaoui, M. Block, *Prospects for laser spectroscopy, ion chemistry and mobility measurements of superheavy elements in buffer-gas traps*, Nucl. Phys. A, Vol. 944, Pages 492-517, December 2015.
- [114] G. Münzenberg et al., Nucl. Instr. Meth. 161 (1979) 65.
- [115] Hamamatsu Photonics Deutschland GmbH, *SI-Pin Diode S1337-1010 BR*, Technische Anleitung, 2016.
- [116] Canberra Industries Inc, <http://www.canberra.com/products/detectors/pips-detectors.asp>

- [117] Leybold Vacuum GmbH, HC 200 Turbomolekularpumpe, 2015.
- [118] Pfeiffer Vacuum GmbH, Compact Full Range Gauge PKR-251 Manual, 2016.
- [119] Pfeiffer Vacuum GmbH, Active Line CMR Manual, 2016.
- [120] SAES Getter S.p.A. , ST 707 Broschüre, Italien , 2016.
- [121] Swagelok Ventile, <https://www.swagelok.de/de-DE/catalog/Valves>, 2016.
- [122] Pfeiffer Vacuum GmbH, QME 200 Manual, 2016.
- [123] Edwards GmbH, Turbopumpe EXT 75DX Series und XDS 10-Scrollpumpe, Manual, 2016.
- [124] Pfeiffer Vacuum GmbH, Compact Full Range Gauge PKR-251 Manual, 2016.
- [125] Leybold Vacuum GmbH, HC 200 Turbomolekularpumpe, 2015.
- [126] nXDS Series, Edwards GmbH, 2014
- [127] Horst GmbH, Power Supply HT30, <http://www.horst.de/english/Tisch-an.htm>, 2016.
- [128] No Dna GmbH, PHI-1051 und PHI-1048, Berlin, 2012.
- [129] Edwards Vacuum GmbH, *Seiko Seiki Turbomolekular pump STP 200/300/400 Series* Instruction manual, <https://www.edwardsvacuum.com/>
- [130] SAES Pure Gas, Gasgetter Mono Torr, 2016.
- [131] Pfeiffer Vacuum, [www.pfeiffervacuum.de](http://www.pfeiffervacuum.de), 2015
- [132] FuG Elektronik GmbH, <http://www.fug-elektronik.de/de/files/115001/HCE-Datenblatt.pdf>
- [133] EA Elektro-Automatik GmbH , Kundenwunsch, <http://www.elektroautomatik.de/de/labornetz-geraete.html>
- [134] Lumasense Technologies, Inc. , Pyrometer Impact IS 8 advanced, 2016.
- [135] PChhetri, Doktorarbeit, voraussichtlicher Arbeitstitel *Laserspektroskopie an Nobelium*, erwartete Fertigstellung 2017.
- [136] Canberra Industries Inc, <http://www.canberra.com/products/radiochemistry-lab/pdf/Model-2004-SS.pdf>
- [137] Ortec GmbH, <http://web.mit.edu/8.13/8.13d/manuals/egg-par-ortec/ortec-471-spectroscopy-amplifier.pdf>

- [138] National Instruments, <http://sine.ni.com/nips/cds/view/p/lang/de/nid/202009>
- [139] National Instruments, <http://www.ni.com/labview/d/>
- [140] Lambda Physik, Excimer Laser LPX Series 1xx-2xx *Instruction Manual*, Lambda Physik AG, D-3400 Göttingen (1995)
- [141] Gerthsen Laserphysik, Kapitel 15, p.833-834 *Helium-Neon-Laser und Gaslaser*
- [142] Lambda Physik, Dye Laser FL 3000 *Instruction Manual*, Lambda Physik AG, D-3400 Göttingen (1985)
- [143] F. P. Schäfer and K. H. Drexhage *Dye Lasers*, Springer-Verlag, (1977). ISBN 978-3-540-51558-6
- [144] Marvin J. Weber, *Handbook of laser wavelengths*, CRC Press LLC, ISBN 0-8493-3508-6, 1999
- [145] Leoni Fiber Optics GmbH, <http://www.leoni-fiber-optics.com/>, 2014
- [146] Wellenzahlenmeter WS7, HighFinesse GmbH, <http://www.highfinesse.com/en/wavelengthmeter/28/high-precision-wavelength-meter>
- [147] rp-photonics encyclopedia, <https://www.rp-photonics.com/optical-parametric-oscillators.html>, 2015
- [148] Prokhorov General Physics Institute, Lambdameter LM-007, 2012.
- [149] Owis GmbH <http://www.owis.eu/produkte/optische-strahlfuehrungssysteme/produktgruppe/sys-40/produkt/1/productview/Main/>, (2014), D-79219 Staufen im Breisgau
- [150] Edmund Optics GmbH <http://www.edmundoptics.de/optics/optical-lenses/plano-convex-pcx-spherical-singlet-lenses/uv-fused-silica-plano-convex-pcx-lenses/48821/>, (2014), D-76227 Karlsruhe
- [151] Quantum Composers Inc. <http://www.quantumcomposers.com/products/pulse-generators/item/9500-series>, (2014), Bozeman, Montana, USA
- [152] Quantum Composers Inc. *9500-series manual*, (2014), Bozeman, Montana, USA
- [153] Lumasense Technologies, Inc. , Programm Infracwin, 2016.
- [154] F. Lautenschläger et al, Nucl. Instrum. Methods B (2016), submitted.
- [155] J. Ziegler, *The stopping and Range of Ions in Matter*, <http://www.srim.org/>, 2013.
- [156] SIMION 8.0, <http://simion.com/>, 2013.

- [157] O. Tarasov und D. Bazin, NIM B 266 (2008) 4657-4664.
- [158] H. Schade, E. Kunz, *Strömungslehre*. Walter de Gruyter, Berlin New York, 1989.
- [159] M. Laatiaoui, *Development of an Ion Mobility Spectrometer for Heavy Element Research*, Dissertation, 2009, München
- [160] M. Laatiaoui, private Kommunikation, 2015.
- [161] M. Laatiaoui, *Perspectives for laser spectroscopy of the element nobelium*, Hyperfine Interact (2014) 227, 69-75
- [162] Balraj Singh, Nuclear Data Sheets 110, 1 (2009).
- [163] M. J. Martin, Nuclear Data Sheets 122, 377 (2014).
- [164] NNDC gov,  $^{255}\text{No}$ , <http://www.nndc.bnl.gov/chart/reCenter.jsp?z=102&n=153>
- [165] R. J. Silva, *Fermium, Mendelevium, Nobelium, and Lawrencium*, The Chemistry of the Actinide and Transactinide Elements, Third Edition, Springer, PO. Box 17, 3300 AA Dordrecht, The Netherlands, 2006.
- [166] J. E. Sansonetti, W. C. Martin, and S. L. Young, *Handbook of Basic Atomic Spectroscopic Data*, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD, 2005
- [167] S. K. Basu, A. A. Sonzogni, Nuclear Data Sheets 114, 435 (2013).
- [168] M. J. Martin, Nuclear Data Sheets 114, 1497 (2013).
- [169] L. K. Peker and J. K. Tuli, Nuclear Data Sheets 82, 187 (1997)
- [170] C. J. Bowers et al., Phys. Rev. A 53, 3103, 1996.
- [171] Blagoev et al, ADNDT 56, 1-40 (1994)
- [172] B. Eichler et al., Fresenius Z. Anal. Chem. 335, 656 (1989), .
- [173] M. Laatiaoui et al, *On laser spectroscopy of the element nobelium ( $Z = 102$ )*, Eur. Phys. J. D (2014) 68-71 .
- [174] B. Eichler et al., Radiochim. Acta 79 , 221 (1997)
- [175] S. Taut et al., J. Alloys Compd. 271-273, 316 (1998)
- [176] M. Laatiaoui et al, Nature (2016), submitted.
- [177] E. Browne, J. K. Tuli, Nuclear Data Sheets 112, 1833 (2011).
- [178] Y. A. Aikoali, Nuclear Data Sheets 96, 177 (2002).
- [179] R. Beerwerth, private Kommunikation, 2016.

- 
- [180] B. Weber et al., *High Temperature Low Pressure Reactions of Oxygen with Tantalum as Studied by Auger Electron Spectroscopy and Line-of-sight Mass Spectrometry*, Centre de Cinétique Physique et Chimique du CNRS, Route de Vandoeuvre-54600 Villers les Nancy, France 1975.
- [181] J.C. Batty und R.E. Stickney, *Quasiequilibrium Treatment of Gas/Solid Reactions. III. Rate of Volatilization of Tungsten by High- Temperature Oxidation.*, *Oxidation of Metals*, Vol. 3, No. 4, 1971.
- [182] R. E. Schlier, *Adsorption of Oxygen and Carbon Monoxide on Tungsten.*, *Journal of Applied Physics* Volume 29, Number 8, 1958.
- [183] J. Sugar , *Revised ionization energies of the neutral actinides*, National Bureau of Standards, Washington, D.C. 20234 (1974).
- [184] A. Borschevsky et al., *Transition energies of atomic lawrencium*, *Eur. Phys. J. D* 45, 115 - 119 (2007).
- [185] A. Borschevsky et al., *Transition energies of atomic lawrencium*, *Eur. Phys. J. D* 45, 115 - 119 (2007).
- [186] J. J. Olivero, R. L. Longbothum, *Empirical fits to the Voigt line width: A brief review*, *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*. Bd. 17, Nr. 2, 1977, S. 233-236.
- [187] Bergmann und Schäfer, *Bestandteile der Materie: Atome, Moleküle, Atomkerne, Elementarteilchen*, 2 Auflage, Walter de Gruyter, 2003
- [188] Raymond M. Measures, *Laser Remote Chemical Analysis*. *Chemical Analysis*, Vol. 94. John Wiley and Sons, 1988.

# Publikationen

## Publikationen in internationalen Zeitschriften

F. Lautenschläger, P. Chhetri, D. Ackermann, H. Backe, M. Block, B. Cheal, A. Clark, C. Droese, R. Ferrer, F. Giacoppo, S. Götz, F.P. Heßberger, O. Kaleja, J. Khuyagbaatar, P. Kunz, A. K. Mistry, M. Laatiaoui, W. Lauth, S. Raeder, Th. Walther, C. Wraith, *Developments for resonance ionization laser spectroscopy of the heaviest elements at SHIP*, Nucl. Instr. and Meth. B, under review, 2016.

M. Laatiaoui, W. Lauth, H. Backe, M. Block, Dieter Ackermann, Bradley Cheal, Premaditya Chhetri, Christoph Emanuel Düllmann, Piet Van Duppen, Julia Even, Rafael Ferrer, Francesca Giacoppo<sup>1</sup>, Stefan Götz, Fritz Peter Heßberger, Mark Huyse, Oliver Kaleja, Jadambaa Khuyagbaatar, Peter Kunz, Felix Lautenschläger, Andrew Kishor Mistry, Sebastian Raeder, Enrique Minaya Ramirez, Thomas Walther, Calvin Wraith & Alexander Yakushev, *Laser spectroscopy of nobelium advances optical studies to the heaviest elements*, Nature, under review, 2016.

M. Laatiaoui, H. Backe, M. Block, F.-P. Heßberger, P. Kunz, F. Lautenschläger, W. Lauth, M. Sewtz, Th. Walther, *On laser spectroscopy of the element nobelium ( $Z = 102$ )*, Eur. Phys. J D, March 2014, 68:71.

M. Laatiaoui, H. Backe, M. Block, P. Chhetri, F. Lautenschläger, W. Lauth, Th. Walther, *Perspectives for laser spectroscopy of the element nobelium*, Hyperfine Interact (2014) 227:6975.

S. Eliseev, K. Blaum, M. Block, S. Chenmarev, H. Dorrer, Ch. E. Düllmann, C. Enss, P. E. Filianin, L. Gastaldo, M. Goncharov, U. Köster, F. Lautenschläger, Yu. N. Novikov, A. Rischka, R. X. Schüssler, L. Schweikhard, and A. Türlér, *Direct Measurement of the Mass Difference of  $^{163}\text{Ho}$  and  $^{163}\text{Dy}$  Solves the  $Q$ -Value Puzzle for the Neutrino Mass Determination.*, PRL 115, 062501 (2015).

# Lebenslauf

## Persoenliche Daten

---

Felix Lautenschläger  
geboren am 26.01.1985 in Hungen

## Ausbildung

---

von 1991 bis 1995		Grundschule Am Zwenger, Hungen
von 08.1995	bis	Gesamtschule Hungen
06.2004		
06.2004		Abitur: Note 2,1 (gut)

## Hochschulausbildung

---

von 10.2004	bis	Studium Physik Diplom Justus Liebig Universität Gießen
10.2010		
von 09.2009	bis	Diplomarbeit, <i>Entwicklung, Aufbau und Inbetriebnahme eines Energiebunchers für einen Multireflexions-Flugzeit-Isobarensseparator</i> , Note: 1,7 (gut)
10.2010		
Ab 10.2011		Wissenschaftlicher Mitarbeiter (Doktorand), Institut für Angewandte Physik, TU Darmstadt



# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen Leuten danken, die mich in und abseits des Labors begleitet haben und so zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. Zu Beginn möchte ich Professor Dr. Thomas Walther für die Möglichkeit danken, meine Promotion an dem SHIPT-RAP Experiment durchführen zu können.

Ebenso möchte ich Professor Dr. Michael Block für seine ausgezeichnete Betreuung vor Ort danken. Aufgrund seines großen Sachverstandes in Bezug auf die Laserspektroskopie konnte ich sehr viele Dinge lernen.

Ganz besonderer Dank gilt meinen früheren und derzeitigen Kollegen der SHE-Physik Gruppe: Dr. Sebastian Raeder, Dr. Mustapha Laatiaoui, Dr. Christian'Don Christiano' Droese, Dr. Francesca Giacoppo, Dr. Andrew Mistry, Dr. Fritz-Peter'the cat'Heßberger, Premaditya Chhetri und Oliver Kaleja. Die wertvollen Diskussionen über die aktuellen Probleme im Labor und alles weitere außerhalb dessen werden mir besonders fehlen. Die durchgeführten Projekte hätten ohne ihre Mitwirkung nicht realisiert werden können.

Mein Dank gilt desweiteren allen Mitgliedern der RADRIS-Kollaboration. Ohne deren Einsatz wäre ein erfolgreiches Durchführen der Strahlzeiten kaum möglich gewesen. Desweiteren möchte ich an dieser Stelle Prof. Dr. Yuri Novikow, Dr. Sergey Eliseev, Dr. Dimitry Nesterenko, Pavel Filianin und Stanislav Chenmarev danken.

Davide Racano möchte ich im Speziellen für seinen Einsatz an der Fräse und der Drehbank danken, wodurch dringende Probleme schnell und unbürokratisch gelöst werden konnten. Meiner Arbeitsgruppe an der TU Darmstadt gilt mein Dank dafür, dass ich mich bei meinen Besuchen zur Gruppenbesprechung immer als Teil des Kollektivs gefühlt habe.

Meinen Eltern gilt mein Dank für die stetige Unterstützung, nicht nur während der Promotion, sondern auch in allen erdenklichen Lebenslagen. Besonders danken möchte ich meinem Bruder und seiner Frau, die in jeder Situation ein offenes Ohr für mich haben.

Zuguterletzt möchte ich ein paar Freunden danken, mit denen ich angenehme Stunden, sei es auf der Bühne oder bei anderen Freizeitaktivitäten verbracht habe. Namentlich erwähnt: Fred, Christian, Hagen, Nail, Sebastian M., Sebastian L., Marcos, Sascha, Christiane, Uwe und alle anderen, die ich jetzt an dieser Stelle vergessen habe.